



DYNAMIQUE DE LA GENERATION D'HARMONIQUES DANS LES ATOMES ET LES MOLECULES

Willem Boutu

► To cite this version:

Willem Boutu. DYNAMIQUE DE LA GENERATION D'HARMONIQUES DANS LES ATOMES ET LES MOLECULES. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2007. Français. NNT: . tel-00593728

HAL Id: tel-00593728

<https://theses.hal.science/tel-00593728>

Submitted on 17 May 2011

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITE PARIS XI
UFR SCIENTIFIQUE D'ORSAY

THESE
Présentée pour obtenir

LE GRADE de DOCTEUR EN SCIENCES
DE L'UNIVERSITE PARIS XI ORSAY
Spécialité : Lasers et Matière

Par
Willem BOUTU

<p>Dynamique de la génération d'harmoniques dans les atomes et les molécules</p>

Soutenue le 28 septembre 2007 devant le jury composé de :

M. Alain HUETZ	Président
M. Bertrand GIRARD	Rapporteur
M. Eric CORMIER	Rapporteur
M. Olivier FAUCHER	
M. Alfred MAQUET	
M. Hamed MERDJI	
M. Armin SCRINZI	Membre invité

Remerciements

Cette thèse représente le fruit de trois années de travail collectif au sein du groupe attophysique du SPAM. C'est pourquoi je tiens en tout premier lieu à remercier l'ensemble du groupe, tant pour leurs compétences multiples qu'ils ont si bien su partager, leur disponibilité à toute heure du jour et de la nuit que pour la bonne ambiance qui régne au sein du labo. Merci donc à Thierry Auguste, Marc Billon, Pierre Breger, Bertrand Carré, Jean-Pascal Caumes, Renée Charrière, Christian Cornaggia, Marco De Grazia, Romuald Fitour, Marie Geleoc, Stefan Haessler, Marylène Kos, Yann Mairesse, Hamed Merdji, Patrick Monchicourt, Ana-Maria Pena, Alessandra Ravasio, Pascal Salières, Alessandra Tortora, Matthieu Vitteau, Hubertus Wabnitz et Sébastien Wéber.

Je remercie également Alfred Maquet, mon directeur de thèse, d'avoir accepté de suivre mon travail, ainsi que pour les nombreuses discussions sur l'interprétation des résultats expérimentaux. Merci également à Richard Taïeb et Jérémy Caillat pour leur travail sur la technique de reconstruction tomographique et pour avoir su produire de si jolis résultats deux jours avant ma soutenance.

Je remercie l'ensemble des membres de mon jury, Olivier Faucher, Alain Huetz et Armin Scrinzi, ainsi qu'Éric Cormier et Bertrand Girard qui ont accepté la lourde tâche de rapporteur.

Ces expériences n'auraient pu aboutir sans les compétences et la disponibilité de l'équipe source. Leurs conseils et leur aide lors de la mise en place des expériences, tout comme la qualité du laser qu'ils délivrent à tout heure du jour et de la nuit, se sont révélés indispensables. Merci donc à David Garzella, Olivier Gobert, Jean-François Hergott, Philippe Hollander, Delphine Jourdain, Fabien Lepetit, Pierre Meynadier avec qui j'ai eu le plaisir de travailler lors de mon stage de DEA ainsi que sur la mise en place du programme d'acquisition au kHz, Michel Perdrix, Olivier Tcherbakoff.

Je remercie l'ensemble des personnes avec lesquelles j'ai pu collaborer. Anne

L’Huillier, qui m’a accueilli à Lund au début de ma thèse, les Éric et Inigo du CELIA de Bordeaux ainsi que Philippe Balcou et Olga Boyko du LOA avec lesquels nous avons travaillé sur la mise en forme spatiale des faisceaux lasers, et enfin Leszek, Marek et Gavin.

Je remercie Michel Bougeard, Eric Caprin, André Fillon, Didier Guyader et Gilles Le Chevallier pour leur disponibilité, même lorsqu’il s’agissait de faire des réparations d’urgence pour la veille.

Je remercie aussi Véronique Gerecky et Jacqueline Bandura, dont les relations m’ont permis de finir ma thèse dans de meilleures conditions.

Merci également à l’ensemble des thésards (ou ex thésards) de Saclay, ou d’ailleurs, qui ont contribué à rendre ces trois années agréables. Merci à Marco qui a si souvent partagé ma chambre d’hôtel, Yann et Hubertus pour les petits déj et les coinches du mercredi, Jérôme pour les vacances chez Alessandra, Alessandra pour nous avoir fait découvrir son pays, Hélise pour son tiramisu, Guillaume et Marie...

Enfin, merci à ma famille pour son soutien, à mes parents et beaux-parents qui ont tenu à venir sur Paris écouter mes propos incompréhensibles puis assurer toute l’intendance lors de ma soutenance. En bien sûr, merci à celle qui, bien qu’impermeable aux maths et à la physique, a accepté de partager la vie d’un physicien.

Table des matières

Introduction	9
Partie I	15
1 Optimisation de la Génération d’Harmoniques	17
1.1 Réponse collective et accord de phase	19
1.1.1 Accord de phase	19
1.1.2 Optimisation du signal harmonique	22
1.2 Étude théorique de la génération d’harmoniques par un faisceau mis en forme spatialement	32
1.2.1 Mise en forme spatiale	32
1.2.2 Descriptions des codes de simulations numériques	37
1.2.3 Simulations	41
2 Génération d’harmoniques d’ordres élevés par un faisceau laser mis en forme spatialement	49
2.1 Mise en forme du faisceau laser	50
2.1.1 Dispositif expérimental	50
2.1.2 Étude de la mise en forme spatiale du faisceau laser	52
2.2 Étude de la génération d’harmoniques par un faisceau carré	57
2.2.1 Dispositif expérimental	57

2.2.2	Résultats expérimentaux	58
2.2.3	Effet de volume ou augmentation de l'efficacité de génération ?	66
2.3	Conclusion	71
3	Conclusion de la première partie et perspectives	73
3.1	Principaux résultats	73
3.2	Génération d'harmoniques à haute énergie	75
3.3	Génération d'impulsions attosecondes uniques par un faisceau carré	76
	Partie II	79
4	Théorie de la génération d'harmoniques à l'échelle atomique et moléculaire	81
4.1	La génération d'harmonique à l'échelle atomique et moléculaire . .	82
4.1.1	Le modèle en trois étapes	82
4.1.2	Le modèle quantique de Lewenstein	83
4.1.3	Dynamique électronique	85
4.2	Génération d'harmoniques dans les molécules	89
4.2.1	Les harmoniques comme sonde de la structure des molécules	90
4.2.2	Interférences lors du processus de recombinaison	91
4.2.3	Reconstruction tomographique d'orbitale moléculaire . . .	96
5	Techniques expérimentales	101
5.1	Alignement des molécules	101
5.1.1	Alignement adiabatique	102
5.1.2	Alignement impulsif	103
5.2	Dispositif expérimental	108
5.2.1	Alignement des molécules	109

5.2.2	Montage expérimental pour la génération d'harmoniques et la mesure de phase	109
5.2.3	Détection	110
5.2.4	Mesures	112
5.2.5	Analyse des mesures RABITT	115
6	Génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les molécules alignées	121
6.1	Mesure de phase dans les molécules alignées	121
6.1.1	Effet de l'alignement sur les propriétés de la génération d'harmoniques	122
6.1.2	Observation de la dynamique électronique attoseconde dans les molécules	129
6.2	Influence de l'éclairement de génération	137
6.2.1	Résultats expérimentaux	137
6.2.2	Dynamique électronique fonction de l'éclairement	142
6.3	Conclusion	143
7	Conclusion de la seconde partie et perspectives	147
7.1	Résumé des principaux résultats	147
7.2	Reconstruction tomographique d'orbitale moléculaire	149
7.3	Études dynamiques et mesures de phase spectrale	155
7.3.1	Utilisation de la dérive de fréquence attoseconde	155
7.3.2	Expériences de type pompe-sonde	156
7.4	Évolutions techniques	157
7.4.1	Nouveau montage expérimental	158
7.4.2	Nouveau système laser	158

Publications	161
Bibliographie	196

Introduction

L'avènement des lasers délivrant des impulsions ultra brèves a permis aux chercheurs de disposer d'un outil formidable afin d'étudier les dynamiques ultrarapides lors des interactions laser-matière. Les impulsions laser de quelques dizaines de femtosecondes, aujourd'hui disponibles dans nombre de laboratoires, ont rendu possible l'étude résolue en temps du mouvement des noyaux au cours de réactions chimiques. Cependant, l'homme cherche à repousser les limites de la connaissance : il veut pouvoir voir plus petit, plus profond, plus rapide. Le domaine infrarouge a cependant atteint ses limites : les impulsions les plus courtes générées actuellement ne comportent quasiment qu'un seul cycle optique ([Brabec and Krausz, 2000](#)), et la résolution spatiale est limitée par la longueur d'onde utilisée. La découverte du phénomène de la génération d'harmoniques d'ordre élevé à la fin des années 1980 a permis d'aller au delà de ces limitations ([McPherson et al., 1987](#); [Ferry et al., 1988](#)).

La génération d'harmoniques se produit lors de la focalisation d'une impulsion laser ultrabrève jusqu'à des éclaircissements de l'ordre de 10^{14} W/cm^2 dans un jet de gaz. Il en résulte l'émission d'un rayonnement dans le domaine UVX dans la direction de propagation du laser incident. Ce rayonnement présente une structure spectrale périodique constituée des harmoniques impaires de la fréquence fondamentale, et ce jusqu'à des ordres très élevés ([Seres et al. \(2005\)](#) ont démontré la génération de photons d'énergie de l'ordre du keV en partant d'un laser infrarouge de 750 nm). Le spectre ainsi obtenu présente une structure caractéristique que l'on peut schématiquement diviser en trois zones : pour les ordres les plus faibles, on observe une décroissance rapide avec l'ordre harmonique, expliquée par la théorie des perturbations en optique non linéaire. Cette zone est suivie d'un plateau dont l'étendue est plus ou moins importante selon le gaz utilisé et l'éclaircissement du laser de génération : l'amplitude des ordres harmoniques successifs y est quasi constante. Enfin, le plateau est prolongé d'une zone appelée coupure, dans laquelle l'amplitude des harmoniques chute très rapidement ([Fig. 1](#)). La génération d'harmoniques est un phénomène cohérent. De ce fait, les pro-

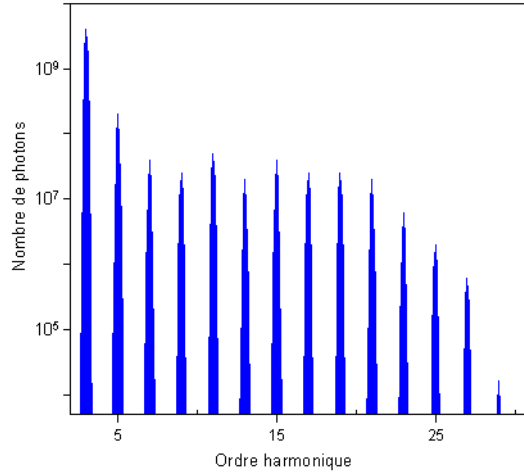


FIG. 1: Spectre d'harmoniques.

priétés du laser incident sont transmises au rayonnement ultraviolet, ce qui en fait une source exceptionnelle. Un nombre important de travaux depuis le début des années 1990 cherchent à optimiser différentes caractéristiques de ce rayonnement. Nous en retenons ici deux : l'augmentation du nombre de photons et la génération d'impulsions attosecondes. La première voie d'étude a consisté à essayer de maximiser l'efficacité de la génération. Pour ce faire, de nombreux milieux ont été testés (génération dans un jet, dans un capillaire, dans une fibre ...). De même, les possibilités offertes par les différents gaz rares furent évaluées, ainsi que par certains gaz moléculaires (Lynga et al., 1996). Cependant, ces derniers se sont révélés moins efficaces que les gaz rares, et furent de ce fait moins étudiés. La solution la plus efficace reste néanmoins l'utilisation d'une lentille de grande longueur focale, qui permet l'obtention d'un large volume de génération et l'utilisation d'une forte énergie laser (Hergott et al., 2002; Takahashi et al., 2003). Grâce à ces nombreux travaux d'optimisation, les applications mettant en jeu le rayonnement harmonique se multiplient. En physique des solides et des surfaces : par exemple, des études de photoluminescence sur des cristaux diélectriques (CaWO_4 et CdWO_4) ont mis en évidence un "quenching" de la luminescence lors de l'irradiation à haut flux par le rayonnement harmonique (DeGrazia, 2007). En imagerie, où Morlens et al. (2006) ont démontré une résolution spatiale de 800 nm par des techniques d'holographie. Il est désormais possible d'observer des effets non linéaires dans les gaz lors de l'interaction avec le rayonnement harmonique (Sekikawa et al., 2004; Benis et al., 2006).

La seconde voie d'étude est l'optimisation des impulsions attosecondes. Différentes

approches sont là aussi possibles. On peut soit contrôler la dérive de fréquence attoseconde par des effets macroscopiques (Mairesse et al., 2004), soit agir directement sur le faisceau harmonique (Lopez-Martens et al., 2005). Lorsque l'on dispose d'impulsions infrarouge ultrabrèves (de un ou deux cycles optiques), maîtriser le champ laser lui même permet de contrôler le nombre d'impulsions attosecondes générées. Ce rayonnement ultrabref peut être alors utilisé pour sonder des processus électroniques ultrarapides, tels que l'effet Auger (Drescher et al., 2002) ou l'effet tunnel (Uiberacker et al., 2007).

Dans une première partie de ce travail de thèse, nous étudierons l'optimisation du rayonnement harmonique. Dans le chapitre 1 nous rappellerons l'importance des effets macroscopiques (accord de phase, absorption ...) dans la construction du champ harmonique à partir du rayonnement du dipôle. Nous verrons quels sont de ce fait les différents paramètres sur lesquels se joue l'optimisation de l'efficacité de génération dans le cas de l'utilisation de grande longueur focale. D'autres géométries ont été testées dans ce même but, telle que l'utilisation d'un miroir déformable couplé à un algorithme génétique. Nous étudierons dans la seconde partie de ce chapitre les moyens numériques que nous avons mis en oeuvre afin de développer et de tester une solution alternative, moins onéreuse qu'un miroir déformable et plus simple à mettre en oeuvre. Nous avons utilisé un dispositif de lames de phase concentriques afin de manipuler la phase spatiale du faisceau et créer ainsi un profil carré élargi autour du point de focalisation.

Le chapitre 2 résume les résultats obtenus par cette technique de mise en forme. Dans un premier temps, nous nous intéresserons à la manipulation de plusieurs faisceaux lasers par trois jeux de lames de phase différents. Puis nous étudierons la génération d'harmoniques d'ordre élevé par un faisceau mis en forme. Nous verrons comment les différents paramètres (déphasage, éclairage, position du jet) influent sur le signal harmonique. Enfin, dans une dernière partie, nous comparerons les deux géométries, à la fois expérimentalement et numériquement. Le chapitre 3 est une conclusion de cette première partie.

Dans une seconde partie, nous étudierons les propriétés de la génération d'harmoniques d'ordres élevés dans les molécules. Les études relatées ici constituent la principale raison de ce travail de thèse.

Dans le chapitre 4, nous aborderons la théorie de la génération d'harmoniques d'ordre élevé à l'échelle microscopique. Puis nous verrons comment la mesure de la phase spectrale de ce rayonnement permet de remonter à la dynamique des paquet d'ondes électroniques lors de la génération dans les atomes. Ces électrons

possèdent une longueur d'onde de l'ordre de l'Angström, et leur déplacement est de l'ordre de la centaine d'attosecondes. De ce fait, ils constituent une sonde potentielle des mécanismes intramoléculaires. Le rayonnement harmonique peut être considéré comme le résultat de l'interférence entre le paquet d'onde électronique accéléré dans le champ laser et l'orbitale atomique ou moléculaire. Par conséquent, les propriétés de cette orbitale sont encodées dans le rayonnement. Le caractériser permet de les retrouver. Itatani et al. (2004) ont montré que l'analyse du rayonnement émis par des molécules d'azote suivant un ensemble d'orientations permettait, à la manière des techniques de tomographies médicales, de reconstruire leur orbitale moléculaire frontière. Cependant cette reconstruction reposait sur une caractérisation incomplète des harmoniques. Les auteurs n'ont pu mesurer que le spectre du rayonnement en amplitude. La phase spectrale, bien qu'indispensable pour la procédure de tomographie, est beaucoup plus difficilement accessible dans l'UV que dans l'infrarouge ou le visible, domaines dans lesquels différentes techniques de mesure sont couramment utilisées.

Le chapitre 5 expose la mise en place expérimentale de la mesure de la phase spectrale dans les molécules. Le rayonnement harmonique généré dans les molécules (nous avons principalement étudié N_2 et CO_2) dépend des molécules (et plus particulièrement de leur symétrie), mais aussi de leur orientation par rapport à la polarisation du champ laser. Dans une première partie du chapitre 5 nous évoquerons la technique d'alignement moléculaire que nous avons utilisée. Nous avons ensuite mesuré l'amplitude mais aussi la phase spectrale des harmoniques. La seconde partie du chapitre décrit l'ensemble du dispositif expérimental utilisé, ainsi que les techniques de mesures. Nous rappellerons enfin le principe des mesures de phase par la méthode RABITT (Reconstruction of Attosecond Burst by Interference of Two-photon Transitions).

Au cours du chapitre 6, nous étudierons les dépendances du rayonnement harmonique en fonction du type de molécule. Nous avons observé la présence d'un minimum spectral lié à un phénomène d'interférences quantiques lors de la recollision du paquet d'ondes électroniques avec la molécule. Nous avons de plus mis en évidence, à la position de ces interférences, un saut de la phase spectrale. Nous étudierons les variations de ce saut de phase en fonction de l'orientation des molécules dans le champ laser et de l'éclairement. Nous verrons enfin quelles sont les conséquences de ces interférences quantiques sur la synchronisation temporelle de l'émission et sur les trains d'impulsions attosecondes.

Pour finir, le chapitre 7 résume les résultats obtenus concernant la génération d'harmoniques dans les molécules. Puis nous reviendrons sur les techniques d'ima-

gerie moléculaire afin d'évoquer les avantages et les limitations de l'utilisation du rayonnement harmonique dans cette optique. Nous terminerons en évoquant les développements à venir au sein du groupe "attophysique" du SPAM sur la mesure des phases spectrales dans les molécules.

PARTIE I

Chapitre 1

Optimisation de la Génération d'Harmoniques

Au cours des dernières années, un certain nombre d'applications utilisant les harmoniques d'ordre élevé comme source de rayonnement UVX ont été développées. Leur cohérence et leur courte durée en font une source unique, qui possède ainsi de nombreux avantages par rapport aux autres sources de rayonnement UVX existantes (voir tableau 1.1). De plus, le rayonnement harmonique est naturellement synchronisé avec le faisceau laser de génération. Cela rend donc possible les expériences de type pompe-sonde, devenues incontournables pour les études de dynamiques.

Un certain nombre d'applications ont déjà démontré l'intérêt de la génération d'harmoniques comme source de rayonnement. Cependant, un grand nombre de

	Laser à Électrons Libres	Laser X	Génération d'Harmoniques
Durée	10 fs	2-100 ps	0.1-20 fs
Énergie par impulsion	40-100 μJ	μJ à mJ	nJ à μJ
Polarisation	oui	non	oui
Cohérence spatiale	oui	non	oui
Cohérence temporelle	non	oui	oui
Taux de répétition	dizaines de Hertz	de 0.1 à 1 Hz	kHz

TAB. 1.1: Comparaison des différentes sources XUV. Voir [Elleaume et al. \(1990\)](#) pour le laser à électrons libres et [Daido \(2002\)](#) pour le laser X.

nouvelles applications seraient rendues possibles si le nombre de photons générés était augmenté. Aussi l'optimisation de l'efficacité de génération est-elle devenue un enjeu majeur.

Pour cela, deux approches sont possibles : on peut essayer d'optimiser la réponse microscopique ou jouer sur le comportement collectif du milieu. Dans le premier cas de figure, il est possible de chercher à optimiser l'éclairement de génération, la longueur d'onde de génération ou la durée de l'impulsion laser, ainsi que de jouer sur la nature du gaz utilisé.

- Le nombre de photons générés augmente avec l'éclairement jusqu'à l'éclairement de saturation (environ 10^{14} W/cm^2 pour l'harmonique 25 générée dans l'argon) ([Wahlstrom et al., 1993](#)).
- Toutes les mesures présentées dans cette thèse ont été effectuées avec un laser centré à 800 nm. Augmenter la longueur d'onde de génération permet d'atteindre des ordres plus élevés. Par contre, les longueurs d'onde plus courtes sont plus efficaces aux ordres faibles ([Shan and Chang, 2001](#); [Tate et al., 2007](#)). D'autres schémas utilisant un mélange de fréquences ($\omega + 3\omega$ ([Watanabe et al., 1994](#)) ou $\omega + 2\omega$ ([Eichmann et al., 1995](#))) ont permis d'obtenir des efficacités supérieures d'un ordre de grandeur.
- Des durées d'impulsion plus courtes permettent elles aussi la génération d'ordres plus élevés ([Christov et al., 1996](#)). En effet, lorsque l'impulsion s'allonge (pour un éclairement constant) le gaz est entièrement ionisé bien avant le maximum temporel de l'impulsion, saturant la génération d'harmoniques.
- En ce qui concerne la nature du gaz utilisé, plus le potentiel d'ionisation du gaz rare est élevé, plus la position de la coupure est décalée vers les ordres élevés. Cependant, plus le gaz est léger, plus l'efficacité de génération est faible ([L'Huillier and Balcou, 1993](#)). Quant à la génération d'harmoniques dans les molécules, nous verrons qu'elle est moins efficace ([Lynga et al. \(1996\)](#) et chapitre 6).

Néanmoins, le champ harmonique à la sortie du milieu résulte de la superposition cohérente des champs rayonnés par l'ensemble des dipôles atomiques. Il est donc nécessaire, dans le but d'optimiser la génération d'harmoniques, de s'assurer que ces champs interfèrent constructivement. Pour ce faire, la polarisation non linéaire et le champ harmonique doivent se propager avec la même vitesse de phase dans le milieu. C'est le problème de l'accord de phase.

1.1 Réponse collective et accord de phase

Dans le cadre de la génération d'harmoniques d'ordre élevé, le problème de l'accord de phase est loin d'être trivial. Nous ne rappellerons ici que les principaux résultats, illustrés de quelques mesures expérimentales effectuées au début de cette thèse, lors d'une campagne d'optimisation du rayonnement harmonique précédant une campagne expérimentale sur le laser LUCA.

1.1.1 Accord de phase

1.1.1.1 Équation de propagation

Afin de bien comprendre comment s'effectue l'accord de phase lors de la génération d'harmoniques d'ordre élevé, nous allons présenter un rappel du formalisme utilisé pour caractériser la propagation du champ harmonique à travers un milieu dispersif. Pour une étude plus détaillée, voir [L'Huillier et al. \(1992\)](#); [Hergott \(2001\)](#).

L'équation générale de propagation d'un champ électromagnétique $\vec{\mathcal{E}}(\vec{r}, t)$ dans un milieu diélectrique isotrope neutre caractérisé par une polarisation électrique $\vec{\mathcal{P}}(\vec{r}, t)$ peut s'écrire comme :

$$\Delta \vec{\mathcal{E}}(\vec{r}, t) - \frac{\partial^2 \vec{\mathcal{E}}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = \frac{\partial^2 \vec{\mathcal{P}}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} \quad (1.1)$$

Si l'éclairement devient trop important, la dispersion due aux électrons libres dans le milieu devient importante, et introduit une défocalisation du faisceau, modifiant ainsi les conditions d'accord de phase. Pour prendre en compte cet effet, on décompose les vecteurs d'ondes en deux parties :

$$\vec{k}_q = \vec{k}_q^0 + \delta \vec{k}_q \quad (1.2)$$

où $\delta \vec{k}_q$ introduit ces corrections. Dans l'approximation paraxiale et de l'enveloppe lentement variable, si l'on décompose le champ comme étant la superposition du champ fondamental et de ses harmoniques impaires, on obtient :

$$\begin{aligned} \Delta_{\perp} \vec{E}_1 + 2\vec{k}_1^0 \frac{\partial \vec{E}_1}{\partial z} + 2(\vec{k}_1^0 \cdot \delta \vec{k}_1) \vec{E}_1 &= 0 \\ \Delta_{\perp} \vec{E}_q + 2ik_q^0 \frac{\partial \vec{E}_q}{\partial z} + 2(\vec{k}_q^0 \cdot \delta \vec{k}_q) \vec{E}_q &= -(q\omega)^2 \vec{P}_q \exp \left(-i \int_{-\infty}^z \Delta k_q^0(z') dz' \right) \end{aligned} \quad (1.3)$$

où \vec{E}_q et \vec{P}_q sont les fonctions enveloppes et Δ_\perp le laplacien transverse (c'est à dire concernant uniquement les coordonnées x et y , z étant selon la direction de propagation du faisceau).

Ce sont ces équations de propagation qui seront résolues numériquement pour le calcul de la propagation des harmoniques par le code brièvement décrit au paragraphe 1.2.2.2 et que nous utiliserons afin de simuler l'effet de la mise en forme spatiale du faisceau infrarouge sur le signal harmonique au chapitre 2.2. Pour que le transfert d'énergie du champ fondamental au champ harmonique généré soit optimal, il faut réaliser la condition, appelée condition d'accord de phase, suivante :

$$\Delta \vec{k}_q = \vec{k}_q - q\vec{k}_1 = 0 \quad (1.4)$$

1.1.1.2 Conditions d'accord de phase

Chercher à optimiser le rayonnement harmonique ne se limite pas à optimiser la réponse du dipôle. Pour que le transfert d'énergie soit optimal, il est indispensable de satisfaire la condition d'accord de phase, c'est à dire que la polarisation non linéaire et le champ harmonique se propagent dans le milieu avec la même vitesse de phase. Cela étant, les champs harmoniques rayonnés par chacun des dipôles interfèrent constructivement, construisant ainsi un champ macroscopique en sortie du milieu. Nous allons au cours de ce paragraphe discuter de ces conditions d'accord de phase dans le cas d'un faisceau infrarouge gaussien, discussion basée sur les résultats présentées dans [Balcou et al. \(1997\)](#); [Hergott \(2001\)](#).

Nous considérons un faisceau gaussien de paramètre confocal b , $E_1 = |E_1|e^{i\varphi_1}$. La phase φ_1 du fondamental fait ici intervenir l'influence des atomes et des électrons libres, introduisant une dispersion dans le milieu, ainsi que la variation géométrique associée à la focalisation du faisceau (c'est à dire, sur l'axe de propagation, la phase de Gouy). Le vecteur \vec{k}_1 associé à cette onde peut donc s'écrire :

$$\vec{k}_1(\vec{r}, z, t) = \nabla \varphi_1 = k_1^0 \hat{\mathbf{z}} + \vec{k}_{geo}(\vec{r}, z, t) \quad (1.5)$$

$\hat{\mathbf{z}}$ étant le vecteur unitaire suivant l'axe de propagation et avec $\vec{r} \perp \hat{\mathbf{z}}$. La phase de la polarisation est reliée à la phase de l'onde fondamentale, mais aussi à l'éclairement du laser, car la phase du dipôle dépend linéairement de cet éclairement, suivant la relation :

$$\varphi_{at} \propto -\alpha_{p,q} I(\vec{r}, z, t) \quad (1.6)$$

où p et q désignent respectivement la trajectoire qui contribue principalement à l'émission et l'ordre harmonique ([Lewenstein et al., 1995](#)). Son vecteur d'onde

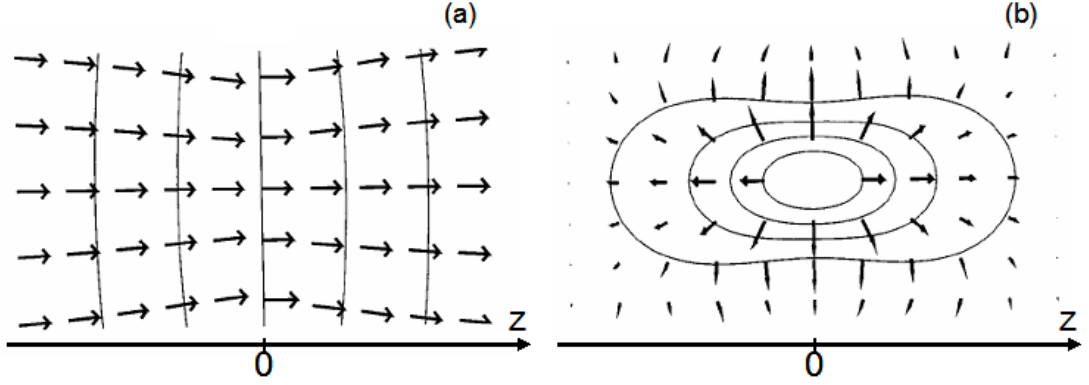


FIG. 1.1: Distribution spatiale dans la région du foyer du vecteur d'onde du laser \vec{k}_1 (a) et du vecteur d'onde associé à la phase atomique \vec{K} (b). Le laser se propage de la gauche vers la droite. Pour les $z > 0$, le laser est focalisé avant le centre du milieu de génération. D'après [Balcou et al. \(1997\)](#).

s'écrit alors, en posant $\vec{K} = -\alpha_{p,q} \nabla I$:

$$\vec{k}_{NL}(\vec{r}, z, t) = q\vec{k}_1 + \vec{K} \quad (1.7)$$

La condition d'accord de phase stipulant que les ondes harmoniques et de polarisation se propagent avec la même vitesse de phase, cela implique la relation suivante :

$$\vec{k}_q = qk_1^0 \hat{z} + q\vec{k}_{geo} + \vec{K} \quad (1.8)$$

Les distributions spatiales des vecteurs d'onde \vec{k}_1 , dépendant de la focalisation, et \vec{K} , dépendant de la distribution d'éclairement, vont ainsi déterminer les régions où l'accord de phase sera réalisé. La figure 1.1 représente les variations spatiales de ces deux paramètres (en (a), \vec{k}_1 , en (b) \vec{K}).

Examinons les conséquences de la formule (1.8). A cause de la distribution spatiale complexe du vecteur \vec{K} , différents cas de figure se présentent selon la position dans le volume focal, schématisés figure 1.2.

- (a) En $r = 0$ et $z = 0$: le vecteur \vec{K} est nul. La phase de Gouy n'est alors pas compensée, et l'accord de phase n'est pas réalisé ($k_q - qk_1 \approx \frac{2q}{b}$, b étant le paramètre confocal).
- (b) En $r = 0$ et $z > 0$: le vecteur \vec{K} permet de compenser le désaccord de phase introduit par la variation de la phase géométrique. L'accord de phase a lieu sur l'axe, ce qui entraîne une émission harmonique centrée en sortie de milieu et en

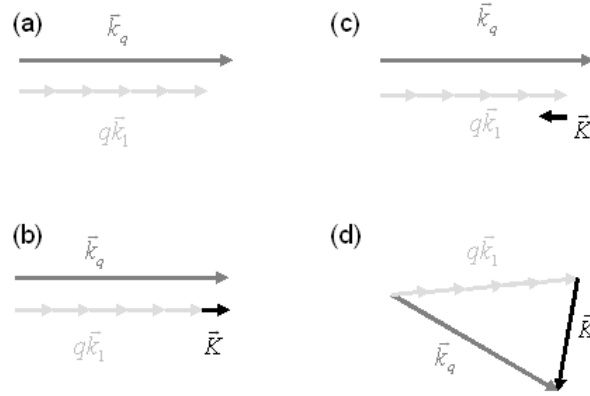


FIG. 1.2: Représentation géométrique de l'accord de phase en terme de vecteurs d'onde en fonction des différentes régions du volume focal. (a) $r = 0$ et $z = 0$, (b) $r = 0$ et $z > 0$, (c) $r = 0$ et $z < 0$, (d) $r \neq 0$ et $z < 0$.

champ lointain. La trajectoire électronique courte est alors favorisée (Salières et al., 2001; Merdji et al., 2006).

- (c) En $r = 0$ et $z < 0$: le vecteur \vec{K} pointe dans la même direction que \vec{k}_{geo} et ne permet donc plus de le compenser. Dès lors l'accord de phase ne peut plus être réalisé.
- (d) En $r \neq 0$ et $z < 0$: il est possible de satisfaire la condition d'accord de phase hors axe. Dans ces conditions, le champ harmonique en sortie de milieu présente une structure annulaire. La trajectoire électronique longue est alors favorisée.

Pour optimiser la génération d'harmoniques, il faut donc chercher à maximiser le dipôle atomique, et à satisfaire les conditions d'accord de phase en jouant sur la position relative du foyer. Il existe cependant de nombreux autres paramètres susceptibles de permettre une augmentation de l'efficacité de génération, tels que la longueur du milieu ou la densité d'atomes. Nous allons dans le paragraphe suivant étudier ces paramètres, en illustrant nos propos de quelques résultats expérimentaux.

1.1.2 Optimisation du signal harmonique

De nombreux schémas de génération d'harmoniques intenses utilisent des cellules remplies de gaz comme milieu de génération. L'avantage d'un tel dispositif est qu'il permet d'obtenir un profil de densité atomique relativement homogène (mal-

gré les pertes aux deux extrémités), et qu'il est versatile. Il est en effet aisé de varier la longueur d'une cellule (soit en utilisant différentes cellules, soit en disposant d'une cellule de taille variable, comme celle présentée Fig. 1.7). De ce fait, il est possible de passer d'un milieu court et dense à un milieu long et peu dense, et ainsi chercher des conditions optimales de génération sur un plus grand nombre de paramètres.

1.1.2.1 Longueurs caractéristiques

Dans le cas où l'accord de phase n'est pas parfaitement réalisé, la quantité Δk_q définie par l'équation (1.4) n'est pas nul. On définit alors la longueur de cohérence L_{coh} comme étant la longueur pour laquelle le champ harmonique et la polarisation non linéaire se déphasent de π . C'est donc la longueur sur laquelle le signal harmonique se construit efficacement. La longueur d'interaction L_{med} ne doit alors pas excéder la longueur de cohérence. Améliorer l'accord de phase permet d'augmenter la longueur de cohérence, et donc d'augmenter la longueur du milieu.

Augmenter le nombre d'émetteurs dans la zone d'interaction, et donc augmenter la pression du milieu, peut sembler constituer un moyen simple d'augmenter le nombre de photons harmoniques. Il faut cependant garder en mémoire que la dispersion due aux atomes joue un rôle crucial dans l'accord de phase. Varier la pression modifie donc la longueur de cohérence L_{coh} . De plus, le milieu générateur est aussi un milieu absorbant pour le signal harmonique, ce qui peut limiter la longueur d'interaction. On définit ainsi une longueur dite d'absorption, L_{abs} , comme la distance sur laquelle le champ est atténué d'un facteur e .

Maximiser la génération d'harmoniques va donc revenir à chercher les valeurs optimales pour les trois longueurs L_{med} , L_{coh} et L_{abs} . Des critères théoriques ont été définis par [Constant et al. \(1999\)](#). Plus exactement, on peut définir les longueurs précédentes comme :

$$\begin{cases} L_{coh} = \frac{\pi}{\Delta k_q} \\ L_{abs} = \frac{1}{\mu_q N(r, z, t)} \end{cases} \quad (1.9)$$

avec $\Delta k_q = k_q - (qk_1^0 + qk_{geo} + K)$, μ_q la section efficace de photoabsorption du milieu atomique à la fréquence $q\omega$ et N la densité du gaz. Alors [Constant et al. \(1999\)](#) ont montré qu'on peut écrire le nombre de photons générés à la fréquence $q\omega$ comme étant proportionnel à :

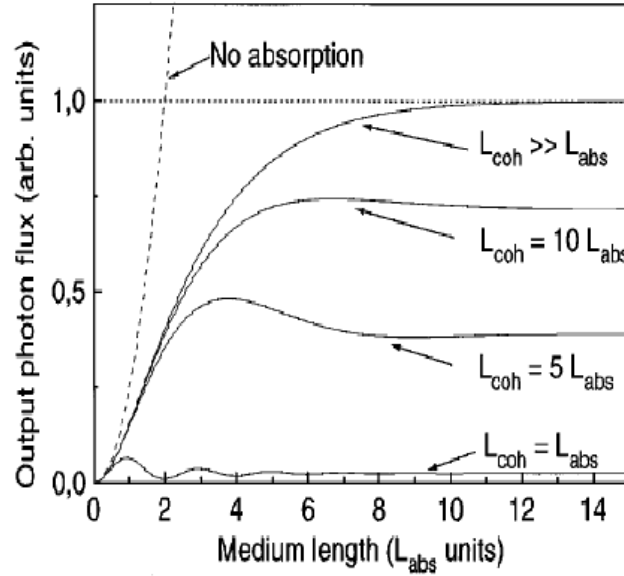


FIG. 1.3: Nombre de photons harmoniques générés en fonction de la longueur du milieu L_{med} , pour différentes longueurs de cohérence L_{coh} . Tiré de [Constant et al. \(1999\)](#).

$$N_q \propto \frac{4L_{abs}^2}{1 + 4\pi^2(L_{abs}^2/L_{coh}^2)} \left[1 + \exp\left(-\frac{L_{med}}{L_{abs}}\right) - 2 \cos\left(\frac{\pi L_{med}}{L_{coh}}\right) \exp\left(-\frac{L_{med}}{2L_{abs}}\right) \right] \quad (1.10)$$

La figure 1.3 représente l'évolution du nombre de photons générés par rapport à la longueur du milieu pour différentes longueurs de cohérence. A partir d'une certaine longueur de milieu (plus de quelques longueurs d'absorption), les harmoniques émises au début du milieu sont réabsorbées. Il est donc inutile de chercher à avoir un milieu de génération trop importante. Il est cependant nécessaire de chercher à maximiser la longueur de cohérence. Si l'on veut que le signal soit au moins égal à la moitié du signal maximum théorique, on définit les conditions suivantes :

$$L_{med} > 3L_{abs} \quad (1.11a)$$

$$L_{coh} > 5L_{abs} \quad (1.11b)$$

Pour conclure, si l'on veut optimiser l'efficacité de la génération, il faut maximiser la réponse du dipôle (et donc travailler à un éclaircissement proche de l'éclaircissement de saturation), optimiser l'accord de phase (et donc augmenter la longueur de cohérence) et choisir les paramètres (tels que la longueur du milieu ou sa densité)

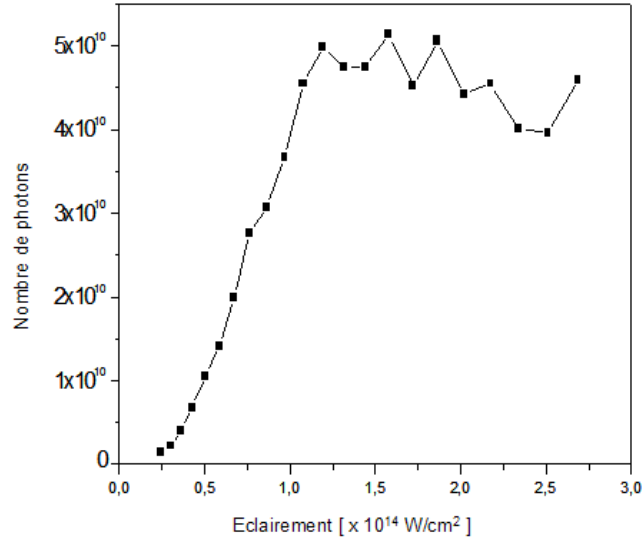


FIG. 1.4: Mesure du signal harmonique (H11 à H15) généré dans un jet d'argon en fonction de l'éclairement de génération.

pour que l'émission soit limitée par l'absorption. Nous allons dans la suite illustrer cette conclusion par quelques exemples.

1.1.2.2 Optimisation expérimentale

Si l'éclairement de génération est augmenté, le signal harmonique augmente lui aussi jusqu'à une certaine valeur de l'éclairement. Cette valeur de saturation dépend du gaz utilisé, et vaut, dans le cas de l'argon, environ 10^{14} W/cm^2 comme le présente la figure 1.4. Y est reporté le signal harmonique mesuré (après un filtre d'aluminium, il s'agit donc du signal intégré des ordres 11 à 15) en fonction de l'éclairement du laser de génération. La figure 1.5 représente l'effet de la densité du milieu sur la génération d'harmoniques. La mesure de la pression effective au sein de la cellule est assez difficile à réaliser, et n'est généralement pas implémentée sur nos expériences. La pression représentée en abscisse sur la courbe est la pression en amont de la cellule, mais elle est proportionnelle à la pression à l'intérieur. Les deux courbes figure 1.5(a) présentent le signal des harmoniques 11 à 15 générées dans le xénon pour deux longueurs de cellules. Il existe dans chacun des cas une pression optimale au-delà de laquelle le signal harmonique chute, pression dépendant de la longueur du milieu. De plus, cette pression optimale dépend du gaz utilisé. Enfin, les mesures indiquent aussi une dépendance de cette pression

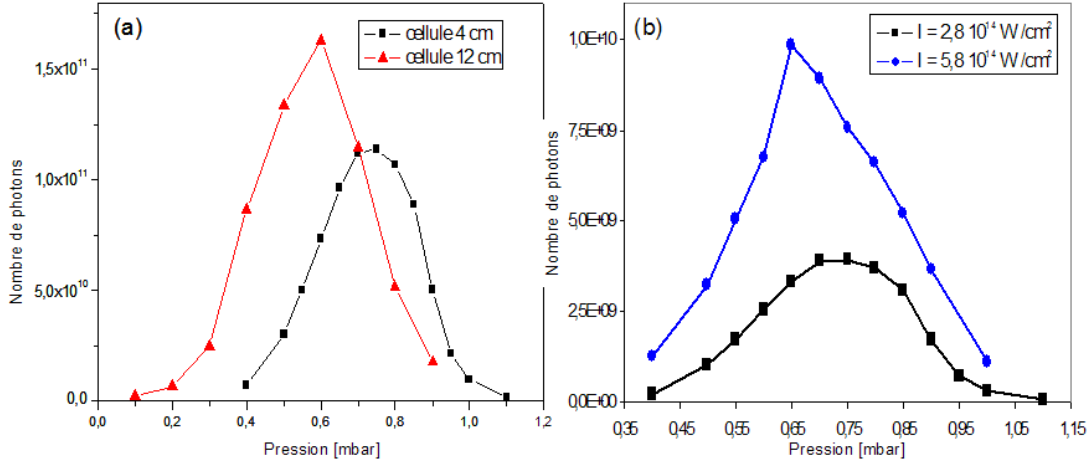


FIG. 1.5: Mesure du signal harmonique (H11 à H15) généré (a) dans le xénon en fonction de la pression, pour un éclairement de $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ et deux cellules de longueurs différentes (carrés noirs : cellule de 4 cm, triangles rouges : cellule de 12 cm) et (b) dans le xénon dans une cellule de 4 cm, pour deux éclairements différents (carrés noirs : $2.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ et cercles bleus : $5.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$).

optimale en fonction de l'éclairement de génération (figure (b)).

L'importance de ces conditions d'accord de phase est visible sur la figure 1.6 où est représenté le signal harmonique en fonction de la position relative du jet et du foyer. Cette courbe présente deux maxima de part et d'autre du foyer, correspondant aux zones (b) et (d) précédentes (en réalité, l'éclairement au foyer lors de la mesure atteignant $1.2 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ il faut aussi prendre en compte les effets de défocalisation dus aux électrons libres qui compliquent la distribution d'éclairement laser, et donc du vecteur \vec{K}).

1.1.2.3 Utilisation de grandes longueurs focales

Tous ces degrés de liberté font de l'optimisation de la génération d'harmoniques un travail complexe, qu'il est nécessaire de réitérer à chaque nouvelle installation ou à chaque modification du montage expérimental. Néanmoins, l'équipe de Saclay a désormais acquis une solide expérience sur ce point, et peut délivrer pour les utilisateurs une énergie harmonique conséquente. Ainsi [Hergott et al. \(2002\)](#) ont pu démontrer la génération de deux microJoules sur l'ordre 15 (i.e. 53 nm) dans le xénon en utilisant une focale de 5 m et 25 mJ d'énergie laser. L'efficacité de génération est alors de $8 \cdot 10^{-5}$. Le laser LUCA permet cependant de délivrer

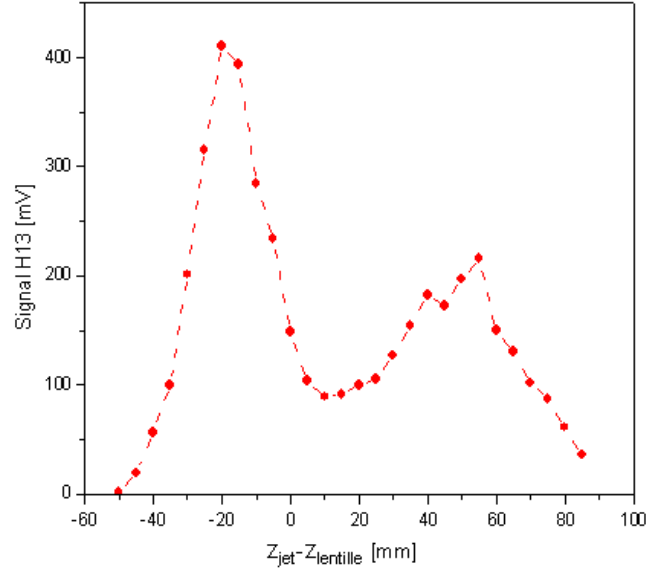


FIG. 1.6: Variation du signal de l’harmonique 13 générée dans l’argon en fonction de la position relative du foyer par rapport au jet. Pour $z < 0$, le foyer du laser est après le jet.

des énergies de 100 mJ. Il est nécessaire de prendre quelques précautions si l’on souhaite utiliser de telles énergies. En effet, l’éclairement de saturation est de l’ordre de 10^{14} à 10^{15} W/cm^2 selon le gaz utilisé (voir par exemple la figure 1.4 dans l’argon). Afin de coupler plus d’énergie avec le milieu sans augmenter l’éclairement, il est nécessaire d’augmenter le volume focal en conséquence. Pour multiplier l’énergie par 4, il faut donc augmenter le volume focal par 4, et le rayon du faisceau par 2. Une solution consiste en augmenter la longueur focale (ici d’un facteur 2).

Nous avons développé un nouveau dispositif expérimental afin de générer les harmoniques à partir de telles énergies laser. Elle est prévue pour être utilisée avec des lentilles de 4 mètres ou plus en fonction de l’énergie laser. La figure 1.7 présente le schéma de ce montage. Le laser provient de la gauche de l’image. Le milieu de génération est constitué d’une cellule de longueur réglable de 1 à 15 cm (elle est représentée sur la photographie figure 1.7 et est placée au sein de la première enceinte, la suivante contenant un spectromètre UVX de haute résolution permettant la sélection d’un ordre harmonique donné). Ce dispositif a été testé à présent pour différentes conditions de génération : selon l’énergie laser que l’on souhaite utiliser, la longueur focale est plus ou moins grande. La figure 1.8(a) représente

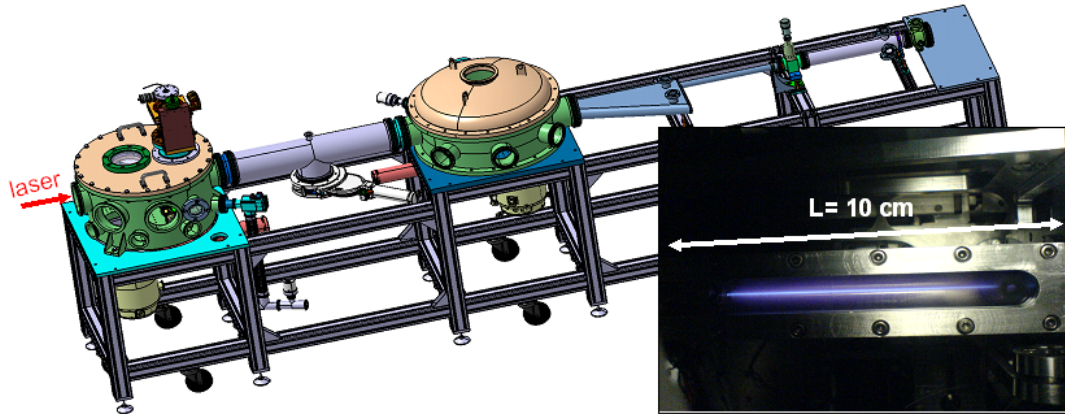


FIG. 1.7: Schéma du nouveau dispositif pour la génération d'harmoniques à haute énergie. La flèche rouge indique le sens de propagation du faisceau infrarouge. En insert, une photographie de la cellule de génération.

l'évolution de l'énergie harmonique générée pour différents gaz en fonction de la longueur de la focale. L'énergie laser utilisée avec la focale de 4 m est de 20 mJ, contre 38 mJ pour la longueur focale maximale. Dans ces conditions, nous avons pu générer près d'un microJoule à 32 nm (ces valeurs sont des valeurs estimées à la source, les transmissions des différentes optiques et des filtres sont prises en compte). Entre ces deux extrêmes, le signal harmonique augmente d'un facteur 1.9 pour l'ordre 21 et d'un facteur 1.5 pour l'ordre 25 (Fig. 1.8(b)). Cependant, l'augmentation du volume focal est de 3.5. L'augmentation du signal est donc inférieure à celle attendue d'après l'effet de volume. Le facteur limitant est ici l'énergie du laser, comme l'indique la courbe rouge de la figure 1.8(b). Il est en effet indispensable de diaphragmer le faisceau, ce qui limite l'énergie disponible à 38 mJ. Des mesures complémentaires à plus hautes énergies seront nécessaires afin de vérifier cet effet. Il est nécessaire de caractériser le plus complètement possible une telle source. Le nombre de photons n'est en soit pas un paramètre suffisant. Pour ce faire, nous avons à l'aide d'une caméra XUV mesuré le profil du faisceau harmonique en champ lointain (Fig. 1.9). La tache mesurée présente un profil gaussien. La divergence de l'harmonique 25 présentée ici est très faible : 0.4 mrad environ (des simulations confirment cette faible valeur de la divergence, certainement due à des effets de propagations dans la cellule). Nous avons de plus cherché à évaluer le degré de cohérence spatiale du faisceau harmonique. Pour ce faire, nous avons inséré un ensemble de fentes d'Young à un mètre du point de focalisation du miroir torique, et avons mesuré la figure d'interférences à 1,6 m

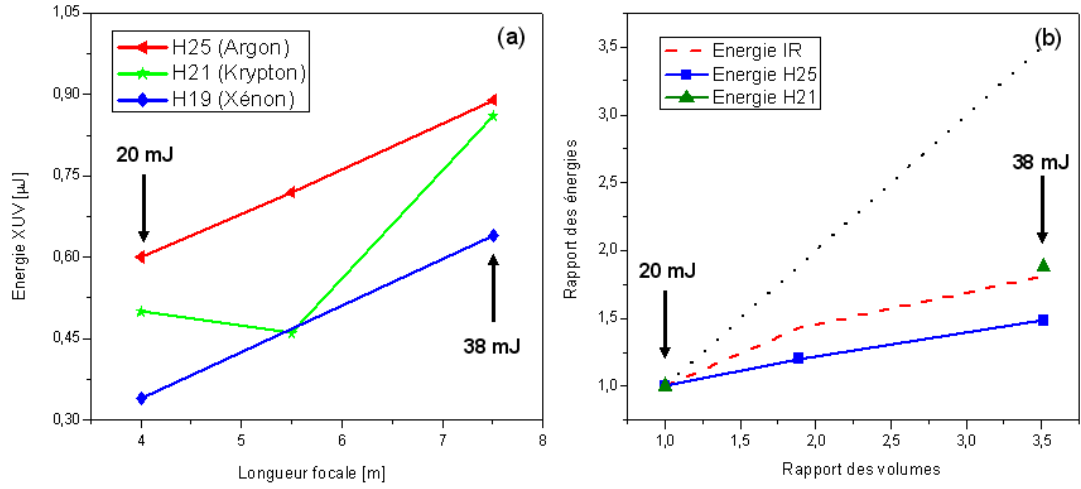


FIG. 1.8: (a) Evolution de l'énergie harmonique générée pour différents ordres harmoniques et différents gaz (triangles : H25 générée dans l'argon, étoiles : H21 générée dans le krypton, losanges : H19 générée dans le xénon) en fonction de la longueur focale utilisée. (b) Evolution du signal harmonique en fonction de l'augmentation du volume de génération (voir texte).

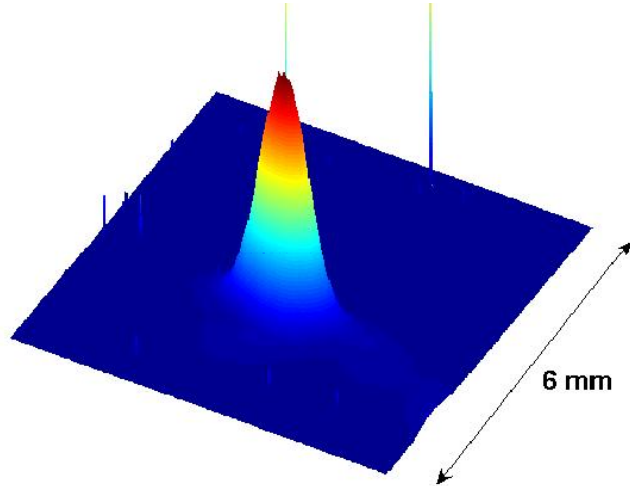


FIG. 1.9: Profil spatial de l'harmonique 25 mesuré en champ lointain. La longueur focale est de 7.5 m, et l'énergie laser de 38 mJ.

avec la caméra XUV. La distance entre les fentes était variable, afin d'étudier la cohérence spatiale du faisceau sur toute sa largeur. On définit le facteur de visibilité des franges comme :

$$V = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}} \quad (1.12)$$

Alors le degré de cohérence spatiale mutuelle γ_{12} s'écrit :

$$|\gamma_{12}| = \frac{2\sqrt{I_1 I_2}}{I_1 + I_2} V \quad (1.13)$$

La figure 1.10 indique le résultat de ces mesures pour 2 longueurs focales différentes. Les figures d'interférences obtenues présentent un contraste élevé, même lorsque les fentes sont éloignées de $500 \mu m$, ce qui correspond à la demi-hauteur du profil. Le degré de cohérence mesuré est relativement indépendant de la longueur focale utilisée (et donc de l'énergie laser) et reste supérieur à 0.4 sur la moitié du profil harmonique. Enfin, le front d'onde du rayonnement harmonique a été mesuré grâce à un analyseur de Shack-Hartmann. Ces mesures montrent que le front d'onde harmonique présente peu d'aberrations d'ordres élevés. De plus, il est relativement indépendant du front d'onde du laser de génération. L'introduction délibérée d'aberrations sur le laser infrarouge n'a pas de conséquence visible sur le front d'onde harmonique.

Nous avons donc réalisé une source UV accordable, qui permet non seulement d'obtenir un flux de photons importants (environ 10^{11} photons à 32 nm), mais possède de plus d'excellentes qualités spatiales. Cela est d'autant plus remarquable que le volume de génération est important et l'énergie laser utilisée est grande, ce qui entraîne des effets d'ionisation et de propagation importants. Si de plus l'on utilise non plus uniquement l'harmonique 25 mais un train d'impulsions attosecondes comprenant les ordres 19 à 27 par exemple, l'énergie UV totale est de l'ordre de quelques microJoules, et l'énergie par impulsion attoseconde de quelques centaines de nanoJoules. Il est prévu d'installer une parabole hors-axe en remplacement du miroir torique pour la focalisation des harmoniques. Par ce biais, nous envisageons l'obtention d'une tache focale de $10 \mu m$ environ. De ce fait, l'éclairement UV obtenu serait de quelques $10^{13} W/cm^2$ pour un ordre harmonique donné. Il est alors possible d'étudier des phénomènes non linéaires, tels que la double photoionisation des gaz rares (Papadogiannis et al., 2003; Miyamoto et al., 2004; Nabekawa et al., 2005; Benis et al., 2006). De même, l'éclairement crête d'une impulsion attoseconde est de l'ordre de $10^{15} W/cm^2$.

L'utilisation d'une lentille de grande longueur focale permet donc d'obtenir des nombres de photons très importants, et a été retenue par différents laboratoires

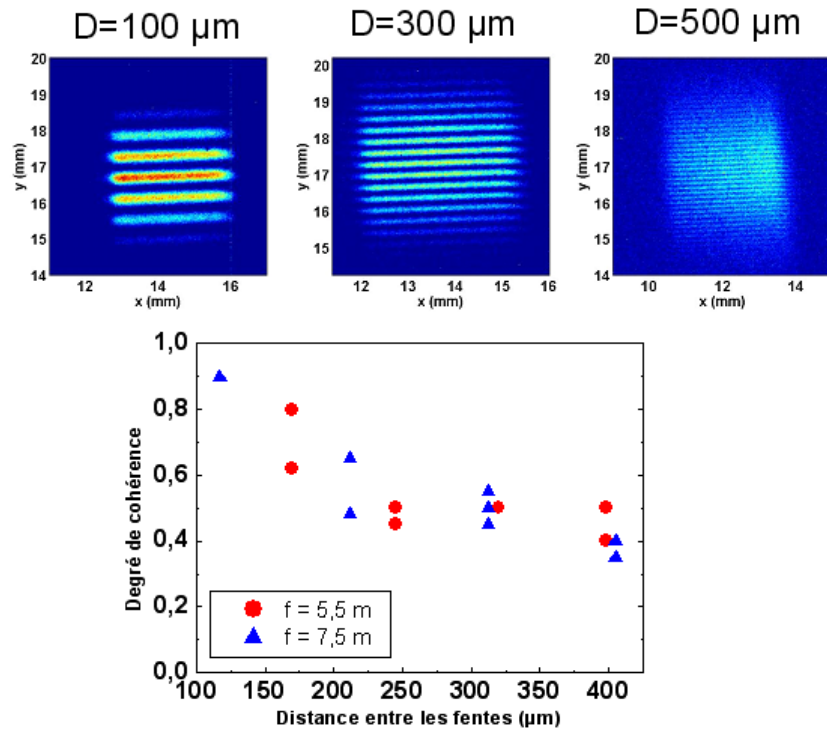


FIG. 1.10: Mesure du degré de cohérence spatiale du faisceau harmonique. Les fentes d'Young sont placées à 1 mètre du point focal du miroir torique, la caméra à 1.6 m. La distance entre les fentes est réglable.

(Hergott et al., 2002; Takahashi et al., 2002). En combinant l'utilisation d'une grande longueur focale avec un contrôle de la phase spatiale du laser grâce à un miroir déformable, Takahashi et al. (2004) ont pu démontrer la génération de 25 nJ à 13.5 nm. Le contrôle de la phase du faisceau infrarouge est donc un élément clé afin d'augmenter l'efficacité de génération (afin de minimiser toute source d'aberration, ils ont placé l'ensemble du système optique sous vide dès le compresseur, et ont remplacé la lentille par un miroir sphérique). Cependant, afin d'utiliser une énergie laser plus importante, il est nécessaire d'augmenter la longueur focale, ce qui pose un problème de place. Nous avons cherché à contourner ce problème en manipulant la phase spatiale du faisceau laser d'une autre façon.

1.2 Étude théorique de la génération d'harmoniques par un faisceau mis en forme spatialement

1.2.1 Mise en forme spatiale

1.2.1.1 Motivations

- Augmentation du nombre de photons harmoniques

Pour augmenter le nombre de photons générés, une des voies les plus simples, à efficacité constante, est d'augmenter l'énergie infrarouge initiale. Cependant, il est nécessaire de garder l'éclairement laser inférieur à l'éclairement de saturation. Dans le cas contraire, nous avons vu que l'ionisation du milieu devient trop importante, entraînant une dégradation de l'accord de phase et la diminution de l'efficacité de génération. Une solution que nous avons présentée précédemment consiste en l'utilisation d'une lentille de longueur focale plus importante. La taille du faisceau au foyer augmente, ainsi que la longueur de la zone où l'éclairement est suffisant pour la génération d'harmoniques. Il est alors possible d'augmenter la taille, à la fois transversalement et longitudinalement, du milieu générateur. Cependant, la figure 1.11 montre les limites de cette technique. Elle représente en effet la longueur focale nécessaire afin que l'éclairement au foyer soit de 10^{14} W/cm^2 en fonction de l'énergie incidente. Pour une énergie supérieure à 100 mJ (qui est l'énergie maximale disponible sur le laser LUCA), il faut utiliser des lentilles de focales supérieures à 20 mètres. Nous avons vu précédemment que l'optimum d'efficacité n'est pas atteint lorsque le laser est focalisé au foyer (Fig. 1.6). De ce fait, si l'on place le milieu gazeux à une distance égale à la longueur de

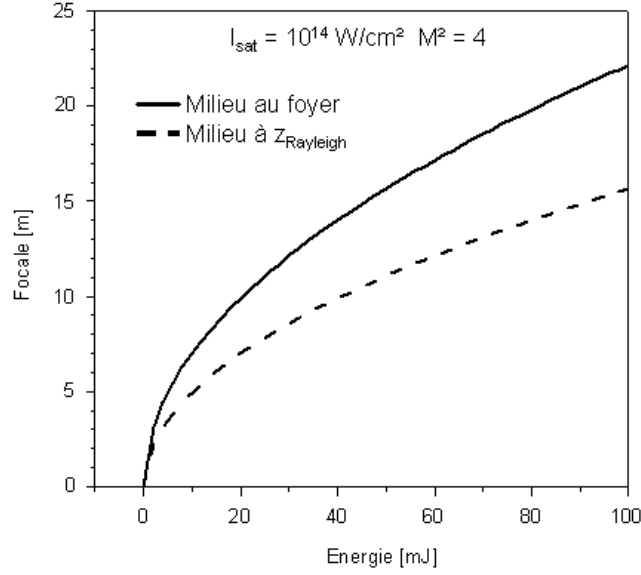


FIG. 1.11: Longueur focale de la lentille en fonction de l'énergie incidente nécessaire pour conserver un éclairement de 10^{14} W/cm^2 . Ligne continue : le point focal est situé dans le milieu. Ligne pointillée : le milieu se trouve à la distance de Rayleigh par rapport au foyer.

Rayleigh du foyer, une longueur focale de 15 mètres suffit. Néanmoins, cela reste une contrainte importante qui impose de prévoir des dispositifs expérimentaux très longs, incompatibles avec la taille de la plupart des salles expérimentales.

Pour palier ce problème, d'autres solutions ont été envisagées et mises en oeuvre par différents laboratoires. Certains ont essayé directement d'améliorer l'accord de phase en générant les harmoniques avec un faisceau présentant deux foyers distincts le long de l'axe de propagation (Roos et al., 1999). Le faisceau infra-rouge était alors mis en forme grâce à l'utilisation d'une lentille biréfringente. D'autres groupes ont utilisé un modulateur à cristaux liquides bidimensionnel afin de manipuler la phase spatiale du faisceau (Pfeifer et al., 2005). Enfin, les techniques les plus courantes combinent l'implantation d'un miroir déformable et d'un algorithme génétique, lequel va commander les déformations du miroir dans le but d'optimiser un paramètre donné (Yoshitomi et al., 2004; Villoresi et al., 2004; Boyko et al., 2005b). Dans le cas de ce dernier type de corrections, on aperçoit que le miroir déformable agit de façon différente selon les cas de figure. Si l'on cherche à optimiser les harmoniques de la coupure, alors l'algorithme essaiera de maximiser l'éclairement dans la zone de génération. Par contre, si l'on veut maximiser les harmoniques du plateau, il joue sur l'accord de phase et déforme

le front d'onde de telle sorte que la région focale soit plus importante (imposant ainsi un éclaircissement proche de l'éclaircissement de saturation).

Nous avons cherché, par une solution plus simple techniquement (et moins onéreuse) à obtenir de même un faisceau large au foyer en utilisant une lentille de longueur focale raisonnable. Plus précisément, nous avons cherché à créer un faisceau dont le profil radial en intensité est carré (ou supergaussien). Cette géométrie comporte plusieurs avantages. Tout d'abord, le volume de génération est agrandi ce qui permet ainsi de coupler plus d'énergie avec le milieu. De plus, cela devrait permettre d'améliorer l'accord de phase. En effet, un éclaircissement homogène dans le milieu permet de rendre le terme \vec{K} de l'équation (1.8) égal à zéro. Dans ces conditions, si l'évolution de la phase du champ infrarouge est peu perturbée, l'accord de phase est possible sur l'axe dans une large zone.

- Point de vue temporel

L'un des intérêts des harmoniques d'ordre élevé tient en leur structure temporelle. En effet, l'émission harmonique par une impulsion infrarouge comportant plusieurs cycles optiques se présente sous la forme de trains d'impulsions attosecondes (Paul et al., 2001). Cependant, Mairesse et al. (2003) ont montré que cette émission comportait une dérive de fréquence : l'émission des différents ordres harmoniques n'est pas synchronisée (voir le chapitre 4). Cette dérive de fréquence (que l'on appelle le chirp attoseconde) est liée à l'éclaircissement de génération : plus l'éclaircissement augmente (dans la limite où l'ionisation du milieu reste faible), plus la dérive de fréquence est faible. Lorsque l'on utilise un faisceau gaussien, la dérive de fréquence des impulsions attosecondes varie donc spatialement. Dans le cas du profil carré, l'éclaircissement ne varie pas radialement, et la dérive de fréquence est identique sur toute la largeur du faisceau. Il reste le problème de la variation temporelle de la phase, mais si l'impulsion de génération est suffisamment courte, cette variation sera réduite. Cet effet est très important : si la dérive de fréquence des impulsions varie radialement, il est nécessaire de prendre en compte les effets de volume lors de l'interprétation des mesures. C'est par exemple le cas des mesures de phase réalisées aux chapitres 5 et 6 : la phase que nous mesurons est une phase moyenne. Cependant, les valeurs de dérive de fréquence que nous mesurons correspondent à celle que l'on obtiendrait si la génération avait lieu uniquement à l'éclaircissement maximal de l'impulsion.

L'un des défis de la science attophysique tient en la production d'impulsions attosecondes isolées intenses. La première solution présentée permettant de produire des impulsions uniques et non plus des trains d'impulsions attosecondes a été la sélection des ordres harmoniques de la coupure (Kienberger et al., 2004). Cepen-

dant ces impulsions sont très peu intenses et leur durée minimale est limitée par la largeur spectrale sélectionnée de la coupure. Plus récemment, Sansone et al. (2006) ont démontré la génération d'impulsions uniques de 130 as grâce à la technique de porte de polarisation (Corkum et al., 1994; Sola et al., 2006). Elle est basée sur la dépendance de la génération d'harmoniques avec l'ellipticité du champ laser incident (Antoine et al., 1996b). L'ellipticité du champ laser est modulée en fonction du temps, et n'est linéaire que pendant un court laps de temps. De ce fait, l'émission harmonique, qui chute très rapidement avec l'ellipticité (Buddil et al., 1993), est confinée à un cycle optique. Cette technique permet d'obtenir des impulsions bien plus intenses que la précédente, et ce sur une bande spectrale plus grande. D'autres techniques ont été proposées, utilisant par exemple un mélange entre le champ laser et sa seconde harmonique légèrement décalée en fréquence afin de briser la symétrie (Merdji et al., 2007) du processus.

La génération d'harmoniques par un faisceau carré est une possibilité supplémentaire. Cette technique propose de créer une porte temporelle liée à un accord de phase transitoire en tirant partie de l'ionisation. Un faisceau carré d'éclairement crête très supérieur à l'éclairement de saturation est créé dans le milieu. Si l'éclairement augmente suffisamment rapidement, seuls les premiers cycles optiques pourront générer des harmoniques, après quoi le milieu sera ionisé. Cette ionisation se fait de manière homogène, empêchant la génération d'harmoniques dans tout le gaz. Si l'impulsion infrarouge initiale est brève, la génération n'aura lieu qu'une seule fois, ce qui entraîne l'émission d'une impulsion attoseconde unique. Des calculs réalisés par Vasily Strelkov, du General Physics Institute de Moscou, en collaboration avec le Centre Lasers Intenses et Applications de Bordeaux confirment ces prédictions.

1.2.1.2 Principe de la mise en forme spatiale

Pour réaliser un profil carré dans la région focale, nous avons cherché à manipuler la phase spatiale du faisceau avant sa focalisation. Le moyen le plus rudimentaire utilisé est la marche (ou le plot en deux dimensions) de phase. En introduisant un déphasage radial donné sur une partie seulement du faisceau, il est possible de modifier le profil au foyer. On peut alors circulariser un faisceau elliptique (Fro-mager and Aït-Ameur, 2001) ou créer un faisceau annulaire (l'énergie sur l'axe est nulle) (Chaloupka et al., 1997; Chaloupka and Meyerhofer, 1999). L'inconvénient de ces techniques est qu'elles font appel à des objets figés. Les marches ou plots de phase utilisés (Fig. 1.12) introduisent en effet un déphasage donné, prévu lors de la phase de conception. Après fabrication, il est impossible de moduler le

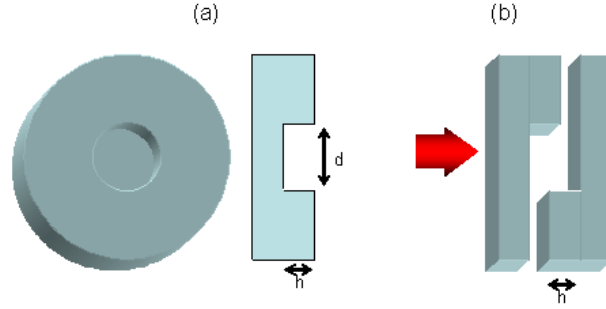


FIG. 1.12: (a) Plot de phase, représentation en 3D et en 2D. (b) Marches de phase (la flèche indique la direction de propagation du laser)

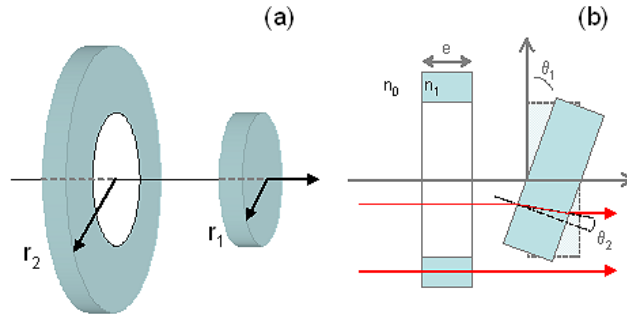


FIG. 1.13: Géométrie des lames de phase

déphasage, ce qui en limite les applications.

Boyko et al. (2005a) ont montré qu'il était possible de créer un profil annulaire au foyer en utilisant un miroir déformable. De ce fait, la valeur du déphasage introduit n'est plus figée mais peut être réglée selon les paramètres expérimentaux. Cependant, nous voulons éviter le recours au miroir déformable. Nous avons donc opté pour une version modulable du plot de phase présenté figure 1.12(a). En utilisant deux lames concentriques, l'une annulaire et l'autre circulaire et d'un rayon plus petit, il est possible de modifier continûment le déphasage entre les parties interne et externe du faisceau en tournant l'une des lames autour de l'axe vertical (figure 1.13). Au cours des paragraphes suivants, nous verrons comment nous avons pu, numériquement et expérimentalement, vérifier la faisabilité de la mise en forme du faisceau laser par cette technique, et comment nous avons pu la mettre en oeuvre pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés.

1.2.2 Descriptions des codes de simulations numériques

Les simulations numériques de la génération d'harmoniques par un faisceau laser mis en forme spatialement ont été réalisées en deux temps. Tout d'abord, nous nous sommes uniquement intéressés à la partie infrarouge, dans le double but de vérifier la possibilité de générer un profil de faisceau carré au foyer d'une lentille par un dispositif aussi simple qu'une marche de phase, puis de déterminer les caractéristiques des lames de phase que nous utiliserions expérimentalement. Le programme de simulation a été écrit sous Labview. Ce langage, bien que peu adapté à la programmation complexe, présente l'avantage de faciliter la visualisation des résultats, ce qui en fait un outil commode pour l'étude que nous voulions réaliser.

Une fois le choix des lames de phase arrêté, nous avons, en parallèle des mesures expérimentales, effectué des simulations de la génération d'harmoniques par un tel faisceau infrarouge.

1.2.2.1 Simulation de la mise en forme spatiale

Le calcul de l'effet du déphasage de la partie interne du faisceau infrarouge par rapport à la partie externe est un calcul de diffraction. Nous nous plaçons dans le cadre de l'approximation paraxiale. Le principe de Huygens Fresnel pour une onde sphérique nous permet de calculer la valeur du champ U en un point P proche du plan focal ([Born and Wolf, 1989](#)) :

$$U(P) = -\frac{ie^{-ikf}}{\lambda f} \iint_W A \frac{e^{iks}}{s} dS \quad (1.14)$$

Comme nous ne considérons que de faibles angles (ici, $f = 2m$ et $a \approx 1cm$), nous pouvons faire les approximations supplémentaires suivantes : $s - f = -\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}$ et $dS = f^2 d\Omega$ avec $d\Omega$ l'angle solide sous lequel on voit dS du point O. Nous pouvons enfin remplacer s par f au dénominateur de l'intégrant. Dans ce cas, l'équation (1.14) devient

$$U(P) = -\frac{i}{\lambda f} \iint_{\Omega} A e^{ik\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}} d\Omega \quad (1.15)$$

Soient $(x; y; z)$ les coordonnées de P et $(\xi; \eta; z)$ les coordonnées de Q (voir figure 1.14) :

$$\begin{cases} \xi = a\rho \sin \theta \\ \eta = a\rho \cos \theta \end{cases} ; \begin{cases} x = ar \sin \psi \\ y = ar \cos \psi \end{cases} \quad (1.16)$$

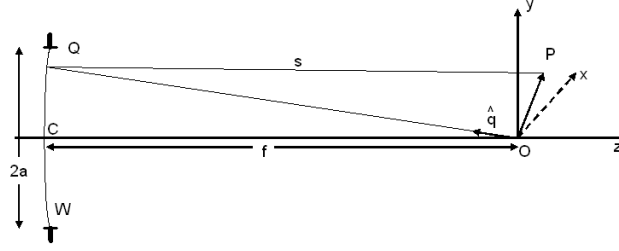


FIG. 1.14: Notations pour le calcul de la diffraction d'une onde sphérique par un trou circulaire.

Nous pouvons utiliser les grandeurs sans dimension u et v suivantes :

$$u = \frac{2\pi}{\lambda} \left(\frac{a}{f}\right)^2 z \quad , \quad v = \frac{2\pi}{\lambda} \frac{a}{f} r \quad (1.17)$$

Évaluons le terme dans l'exponentielle. Comme le point source Q appartient à la surface d'onde, on trouve que :

$$k\mathbf{q} \cdot \mathbf{R} = v\rho \cos(\theta - \psi) - \left(\frac{f}{a}\right)^2 u + 1/2u\rho^2 \quad (1.18)$$

De ce fait, l'équation (1.15) devient :

$$U(P) = -\frac{ia^2}{\lambda f^2} e^{i\left(\frac{f}{a}\right)^2 u} \int_0^1 \int_0^{2\pi} A e^{-i(v\rho \cos(\theta - \psi) - 1/2u\rho^2)} \rho d\rho d\theta \quad (1.19)$$

dont la forme est identique à celle de la fonction de Bessel d'ordre 0 J_0 définie par :

$$J_0(x) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} e^{ix \cos \alpha} d\alpha \quad (1.20)$$

Pour conclure, nous pouvons exprimer le champ obtenu en tout point P proche du foyer par la diffraction par une ouverture circulaire comme étant égale à la somme de ses parties réelle C et imaginaire S .

$$U(P) = -\frac{i2\pi a^2}{\lambda f^2} e^{i\left(\frac{f}{a}\right)^2 u} (C(u, v) - iS(u, v)) \quad (1.21a)$$

avec

$$\begin{cases} C(u, v) &= \int_0^1 A J_0(v\rho) \cos(1/2u\rho^2) \rho d\rho \\ S(u, v) &= \int_0^1 A J_0(v\rho) \sin(1/2u\rho^2) \rho d\rho \end{cases} \quad (1.21b)$$

Dans le cadre de nos simulations, nous voulions être aussi proches que possible des propriétés du laser utilisé pour les expériences. La quantité A devient donc dépendante du rayon ρ de la façon suivante :

$$A(\rho) = A_0 e^{-\left(\frac{\rho}{w_0}\right)^{2n}} \quad (1.22)$$

où n est un entier égal à 1 dans le cas d'un faisceau gaussien. Ce n'est pas le cas du faisceau que nous avons utilisé lors des mesures, le laser LUCA présentant en effet un profil spatial supergaussien d'ordre 4. De plus, afin de réaliser la mise en forme, nous allons déphaser la partie extérieure du faisceau par rapport à la partie centrale. Nous introduisons la fonction créneau $\Phi(\rho)$, qui représente le masque de phase que nous appliquons :

$$\Phi(\rho) = \begin{cases} 0 & \text{si } \rho \leq r_1 \\ \phi_1 & \text{si } r_1 < \rho \leq r_2 \end{cases} \quad (1.23)$$

où r_1 et r_2 sont respectivement le rayon de la lame de phase interne et le rayon extérieur de la lame de phase annulaire (Fig. 1.13). Nous considérons enfin que les deux lames de phase et la lentille sont confondues (expérimentalement, nous avons placé les lames proches l'une de l'autre dans un faisceau laser collimaté, qui traversait la lentille par la suite).

Plus précisément, ϕ_1 dépend du matériau utilisé pour la fabrication des lames, de leur épaisseur et de l'inclinaison de la lame interne. On peut alors définir le déphasage Φ_1 comme :

$$\phi_1 = \frac{2\pi e}{\lambda} \left\{ n \left[\frac{1}{\cos \theta_2} - 1 \right] + \left[(\tan \theta_1 - \tan \theta_2) \sin \theta_1 - \left(\frac{1}{\cos \theta_1} - 1 \right) \right] \right\} \quad (1.24)$$

où θ_1 et θ_2 sont définis figure 1.13 et n est l'indice de réfraction du milieu (de la silice fondue dans notre cas).

La formule générale (1.21a) devient alors :

$$U(P) = -\frac{i2A_0\pi a^2}{\lambda f^2} e^{i(\frac{f}{a})^2 u} (C_1(u, v) - iS_1(u, v)) \quad (1.25a)$$

$$\begin{cases} C_1(u, v) &= \int_0^1 J_0(v\rho) \cos(1/2u\rho^2 + \Phi(\rho)) e^{-\left(\frac{a\rho}{w_0}\right)^{2n}} \rho d\rho \\ S_1(u, v) &= \int_0^1 J_0(v\rho) \sin(1/2u\rho^2 + \Phi(\rho)) e^{-\left(\frac{a\rho}{w_0}\right)^{2n}} \rho d\rho \end{cases} \quad (1.25b)$$

1.2.2.2 Simulation de la génération d'harmoniques

Nous avons vu au paragraphe 1.1.1 que les effets macroscopiques d'accord de phase sont primordiaux pour la compréhension de la génération d'harmoniques. Aussi si l'on veut calculer le rayonnement émis par un faisceau infrarouge mis en forme spatialement, il est nécessaire d'aller au delà du simple calcul du dipôle harmonique en prenant en compte les effets de propagations.

La simulation de la génération d'harmoniques s'effectue en deux temps, grâce à l'utilisation consécutive de deux codes de calculs. Tout d'abord, un premier

code est utilisé pour le calcul du module et de la phase du dipôle harmonique en fonction du gaz de génération et de l'éclairement laser dans le régime du champ fort, basse fréquence. Ce calcul est basé sur l'expression du dipôle obtenu grâce au modèle de Lewenstein et présenté au paragraphe 4.1.2.1. Il consiste en une recherche des extrema de l'action quasi-classique définie par l'équation (4.3).

Une fois les valeurs du dipôle déterminées pour un ensemble d'éclairement, il faut résoudre les équations de propagation du champ dans un milieu non linéaire avec comme terme source la polarisation non linéaire pour chaque ordre harmonique. La résolution numérique utilise une méthode aux éléments finis. Les propagations des champs fondamental et harmonique sont calculées simultanément, en tenant compte des effets d'ionisation, lesquels peuvent par exemple entraîner la défocalisation du champ laser par les électrons libres. Pour ce faire, l'indice de réfraction du milieu comprend les contributions des atomes neutres, des électrons libres et des ions. De plus, afin de prendre en compte l'effet de la manipulation de la phase spatiale du champ fondamental, nous le définissons en champ lointain, puis nous le propageons jusqu'à l'entrée du milieu de génération par une transformée de Hankel (la propagation dans le milieu s'effectuant par résolution des équations de propagation).

Le champ harmonique en sortie de milieu est calculé en amplitude $E_q(\mathbf{r}, t)$ et en phase $\phi(\mathbf{r}, t)$. Nous avons donc accès aux profils temporel et spatial du champ. Le nombre de photons harmoniques N_q est calculé en intégrant le champ à la fois temporellement et spatialement à la sortie du milieu :

$$N_q = \frac{\epsilon_0 \pi c}{\hbar q \omega} \iint |E_q(\mathbf{r}, t)|^2 r dr dt \quad (1.26)$$

Le spectre de puissance de l'harmonique q considérée est calculé en sommant les contributions spatiales :

$$\begin{aligned} I_q(\omega) &\propto \int_0^\infty |E_q(\omega, \mathbf{r})|^2 2\pi r dr \\ &\propto \int_0^\infty \left| \int_0^\infty E_q(\mathbf{r}, t) e^{i\omega t} dt \right|^2 2\pi r dr \end{aligned} \quad (1.27)$$

Enfin, nous pouvons déterminer le profil spatial en champ lointain du champ harmonique à partir du profil d'émission en sortie de milieu par une transformée de Hankel, simulant ainsi la propagation libre du rayonnement harmonique :

$$E_q(\mathbf{r}', z') = -ik_q \int \frac{E_q(\mathbf{r}, z)}{z' - z} J_0\left(\frac{k_q r r'}{z' - z}\right) \exp\left[\frac{ik_q(r^2 + r'^2)}{2(z' - z)}\right] r dr \quad (1.28)$$

Les simulations numériques nous permettront de mieux cerner le rôle de l'accord de phase lors de la génération d'harmoniques par un faisceau laser mis en forme spatialement.

1.2.3 Simulations

1.2.3.1 Génération d'un profil carré

Un premier cas simplifié permet de comprendre le principe de la mise en forme spatiale du faisceau par manipulation de sa phase. Supposons que l'on déphase de π radians le champ infrarouge dans une couronne définie de telle sorte que l'énergie contenue dans cette couronne soit égale à celle contenue dans la partie centrale du faisceau. Au foyer de la lentille, les champs électriques de ces deux parties se superposent. Comme nous avons introduit un déphasage de π entre elles, elles vont interférer destructivement, créant une zone autour du foyer où l'amplitude du champ sera nulle. La figure 1.15 représente l'évolution de l'intensité infrarouge dans la zone focale, en (a) dans un plan contenant la direction z de propagation du laser et en (b) dans un plan perpendiculaire en $z = 0$. L'intensité présente bien un profil annulaire dans ces deux plans.

Selon le rapport des énergies contenues dans chaque zone et le déphasage imposé, il sera alors possible de moduler ces interférences, et donc de modifier les propriétés du champ laser autour du foyer. La figure 1.16 présente un exemple illustrant le principe du déphasage. Pour ces différents calculs, nous avons utilisé les mêmes paramètres que pour la figure 1.15 puis nous avons fait varier le déphasage entre 0 radians et π radians. Nous représentons ensuite le profil d'intensité pour l'abscisse $z = 0$ (au foyer) en fonction de ce déphasage. On passe ainsi continûment d'un profil gaussien à un profil annulaire, uniquement par le biais de cette simple manipulation. Nous pouvons de plus remarquer que pour un déphasage de $3\pi/4$ radians le profil est presque carré et plus large que le profil gaussien.

Dans un premier temps, nous avons simplement cherché à obtenir un profil carré le plus large possible. La figure 1.17 présente une configuration possible. En (a) est représentée l'évolution de l'intensité infrarouge dans le plan $(x;z)$ (suivant les conventions de la figure 1.15). L'échelle de couleurs est saturée afin de faire ressortir l'intensité du champ à la position du profil carré, à environ 2 cm après le foyer (position symbolisée par une ligne pointillée blanche). Le champ obtenu à la même position par un faisceau non mis en forme présente la même largeur, mais présente une sous intensité sur l'axe (Fig. 1.17(b)). Nous avons non seulement créé un profil carré, mais aussi élargi le profil d'un facteur significatif de 5.7 environ (Fig. 1.17(c)). De plus, la phase radiale varie lentement au niveau du profil carré. La forme du profil évolue lentement sur 1 mm de part et d'autre de la position optimale, permettant l'utilisation d'un milieu gazeux de quelques millimètres pour la génération d'harmoniques. L'éclairement maximal pour le profil

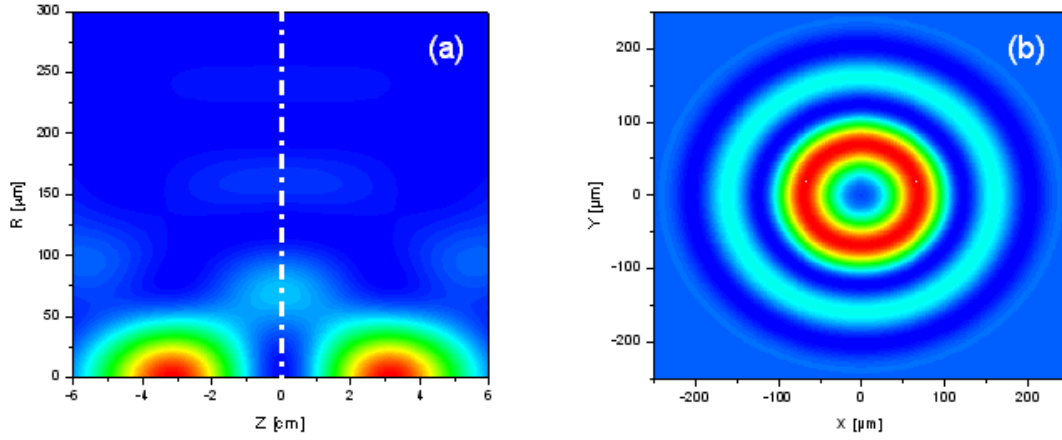


FIG. 1.15: Création d'un profil annulaire au foyer. (a) : Intensité infrarouge dans le plan $(x;z)$. (b) : Intensité infrarouge dans le plan transverse $(x;y)$ en $z=0$ (ligne blanche).

Le laser se propage selon l'axe (Oz) , de la gauche vers la droite. Le diamètre de la lame interne est de 18 mm, celui de la lame externe de 24.5 mm et le déphasage introduit est de π radians.

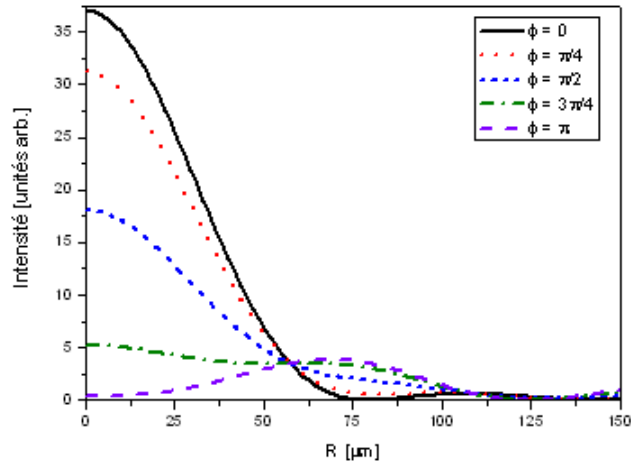


FIG. 1.16: Evolution du profil transverse du faisceau au foyer ($z=0$) en fonction du déphasage introduit.

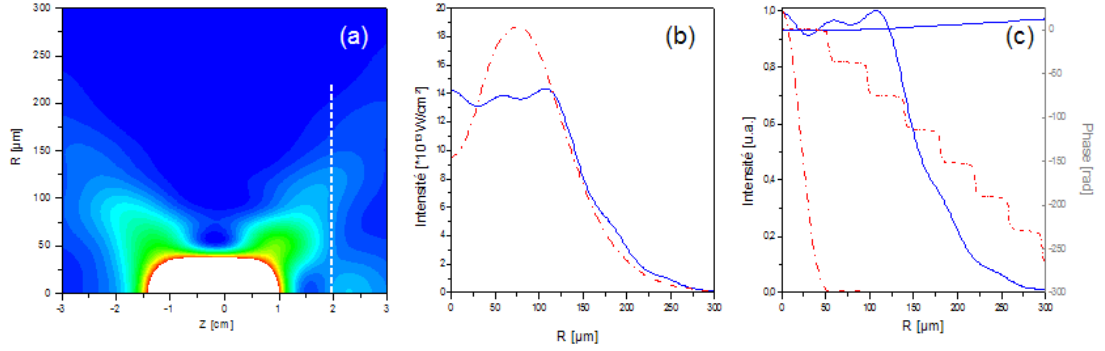


FIG. 1.17: (a) Intensité infrarouge dans le plan $(x;z)$. La ligne pointillée blanche indique la position du profil carré. (b) Comparaison des profils d'intensité dans le cas du faisceau mis en forme (ligne continue bleue) et sans mise en forme (tirets rouge) à la même abscisse. (c) Comparaison des profils d'intensité normalisés dans les cas du faisceau mis en forme à la même position (ligne continue bleue) et sans mise en forme au foyer. Les phases sont représentées par les lignes claires. Le laser se propage selon l'axe (Oz) , de la gauche vers la droite. Le diamètre de la lame interne est de 25 mm, celui de la lame externe de 50 mm, le déphasage introduit est de 5.89 radians et la lentille de 2 m de focale.

carré est environ 50 fois plus faible que ne l'est l'éclairement au foyer d'un faisceau non mis en forme pour la même énergie initiale. Afin de ne pas endommager les optiques que nous utilisons pour l'expérience, nous ne pouvions pas utiliser plus de 15 mJ par impulsion laser. De ce fait, l'éclairement maximal que nous aurions pu atteindre dans cette configuration aurait été de $5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ environ, ce qui est insuffisant pour l'étude que nous envisagions.

Pour cette raison nous avons opté pour la solution présentée figure 1.18, dérivée de l'étude de l'effet du déphasage présentée figure 1.15. Pour un déphasage de 0.8π radians, la propagation du champ infrarouge est profondément modifiée (Fig. 1.18(c)). Une coupe radiale de la distribution d'intensité au foyer ($z=0$) montre que le faisceau présente bien un profil carré. Le rayon de la tache focale est élargi d'un facteur 2.5 par rapport au cas gaussien. Le profil reste là aussi carré sur une distance d'environ 1 mm de part et d'autre du foyer. Le front d'onde est perturbé par rapport au cas gaussien, mais le déphasage introduit reste faible. De plus, le calcul montre que la variation de la phase sur l'axe de propagation est plus faible dans le cas du faisceau carré autour de la position du foyer (0.04 radians sur une distance de 1 mm centrée sur le foyer, ce qui correspond à la longueur du milieu que nous utiliserons par la suite). Par contre, la figure 1.18(d) montre le principal

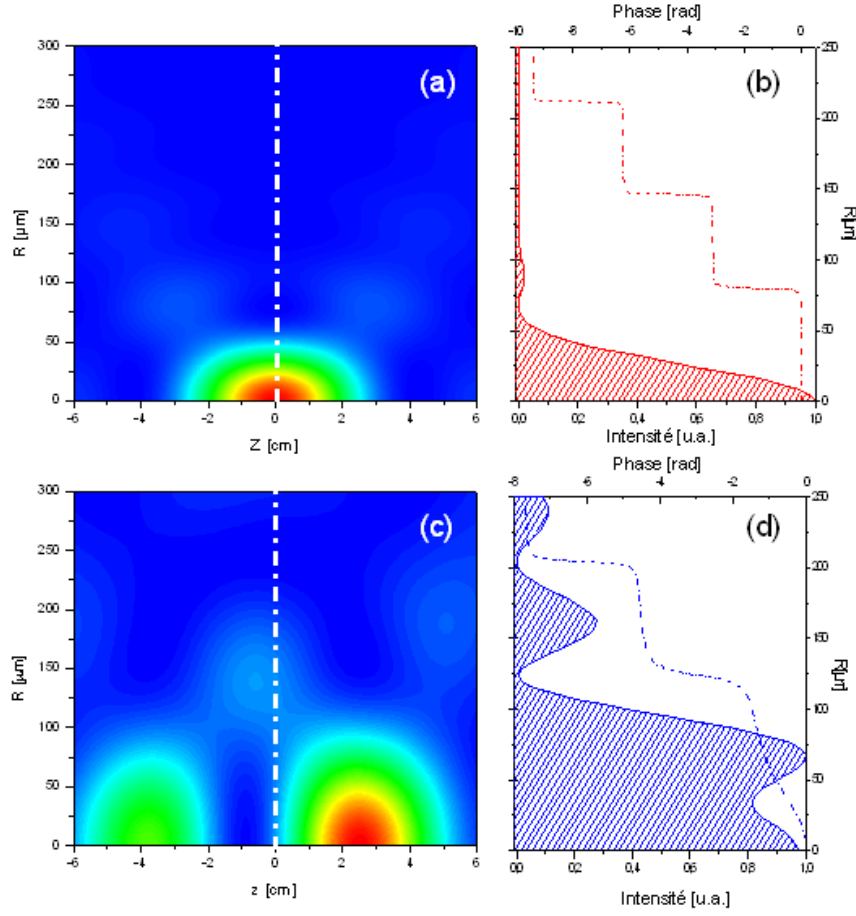


FIG. 1.18: Comparaison de la propagation d'un faisceau mis en forme (c) ou non (a). (a) et (c) : Intensité infrarouge dans le plan $(x; z)$. (b) et (d) : Profil radial d'intensité (ligne continue) et phase (tirets) en $z=0$.

Le laser se propage selon l'axe (Oz) , de la gauche vers la droite. Le diamètre de la lame interne est de 18 mm, celui de la lame externe de 24.5 mm et le déphasage introduit est de 0.8π radians.

inconvénient de cette méthode : l'énergie contenue dans les ailes représente plus de 40% de l'énergie totale. De part cette perte d'énergie, associée à l'élargissement du faisceau, l'éclairement au foyer diminue d'un ordre de grandeur entre les deux configurations. Dans les conditions de la figure 1.18, pour une énergie totale de 15 mJ, l'éclairement au foyer passe ainsi de $1.1 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ à $1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, valeur proche de l'éclairement de saturation dans l'argon. Utiliser une telle lame de phase devient donc envisageable pour démontrer la faisabilité de la technique.

Nous avons donc décidé d'étudier l'effet de la mise en forme du faisceau infrarouge

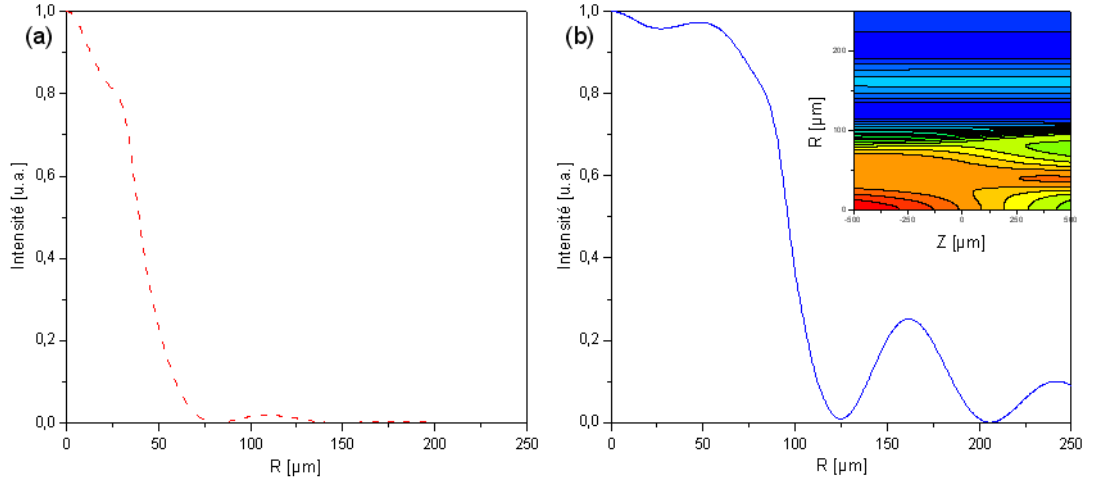


FIG. 1.19: Comparaison des profils laser au foyer (a) sans mise en forme et (b) avec mise en forme. Le diamètre de la lame interne est de 18 mm, celui de la lame externe de 24.5 mm et le déphasage introduit est de 0.8π radians. En insert, évolution de l'éclairement dans le jet de gaz pour le faisceau mis en forme.

sur la génération d'harmoniques à partir des lames de phase définies figure 1.18, ainsi que de deux autres jeux de lames, l'un de taille supérieure et l'autre de taille inférieure.

1.2.3.2 Génération d'harmoniques

Le code de génération et propagation des harmoniques que nous avons utilisé nous permet aussi de propager le champ infrarouge fondamental en tenant compte des effets de défocalisation dans le milieu. Nous avons ainsi pu vérifier les résultats précédents et observer les conséquences des effets de propagation sur le profil carré et sa phase. La longueur du milieu a été fixée à 1 mm. La figure 1.19 présente les profils du faisceau laser obtenus au foyer pour un faisceau non mis en forme (figure (a)) et pour un déphasage de 0.8π radians (figure (b)). En insert est représentée l'évolution de l'éclairement infrarouge dans le milieu de génération dans le cas d'un faisceau mis en forme. Le foyer, et donc le profil carré de la figure (b), se trouve à $z=0$. Les lames de phase utilisées pour cette simulation sont les mêmes que celles de la figure 1.18. Les légères différences entre les profils obtenus par les deux méthodes sont dues à des effets de propagation. Néanmoins, l'élargissement obtenu est le même dans les deux cas.

La figure 1.20 présente l'évolution du signal harmonique en fonction de la pression

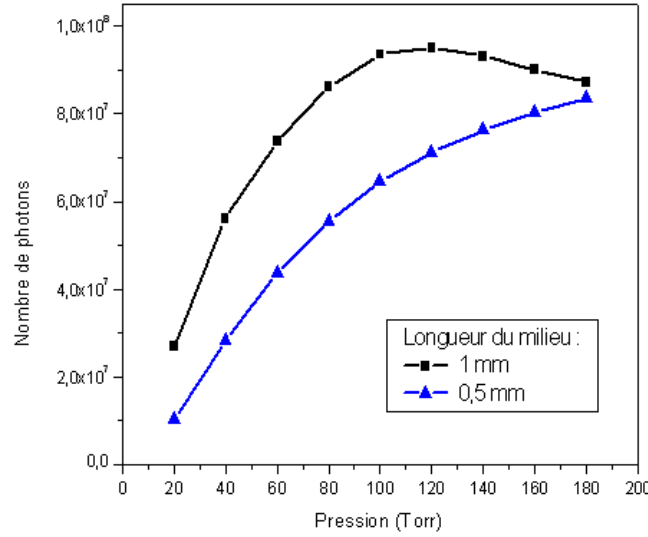


FIG. 1.20: Evolution du signal harmonique (H19) générée dans l'argon par un profil carré en fonction de la pression, pour deux longueurs de milieu (carré : jet de 1 mm, triangle : jet de 0.5 mm).

pour deux longueurs de milieu différentes. Le profil infrarouge utilisé est le profil carré présenté figure 1.19(b). Comme dans le cas du faisceau gaussien, il existe une pression optimale. Pour tous les calculs, nous nous sommes placés dans ces conditions de saturation : la longueur du milieu est de 1 mm et la pression de 120 Torr. Nous avons vu précédemment que la phase spatiale du profil carré était relativement constante radialement et suivant l'axe de propagation. Elle varie très lentement dans tout le milieu que nous considérons pour les calculs. Afin d'étudier l'effet de la mise en forme du faisceau sur l'accord de phase, nous avons calculé la valeur de l'intensité harmonique dans tout le milieu au moment du maximum de l'impulsion laser (Fig. 1.21). Dans le cas du faisceau gaussien, la génération s'effectue majoritairement hors axe. Lors de l'utilisation d'un faisceau carré, la distribution du champ harmonique dans le milieu présente des structures beaucoup plus complexes. Le champ se construit majoritairement sur la fin du milieu (il est à noter que le profil est carré sur toute la longueur du milieu, bien que l'éclairement soit légèrement supérieur sur la fin). Dans ce cas aussi il existe une composante hors axe du champ, mais la composante sur l'axe de propagation est légèrement supérieure. Bien que la phase du champ laser évolue peu dans le milieu, il semble donc que l'accord de phase soit complexe.

L'effet du déphasage est clairement visible sur la figure 1.22. Le signal harmonique

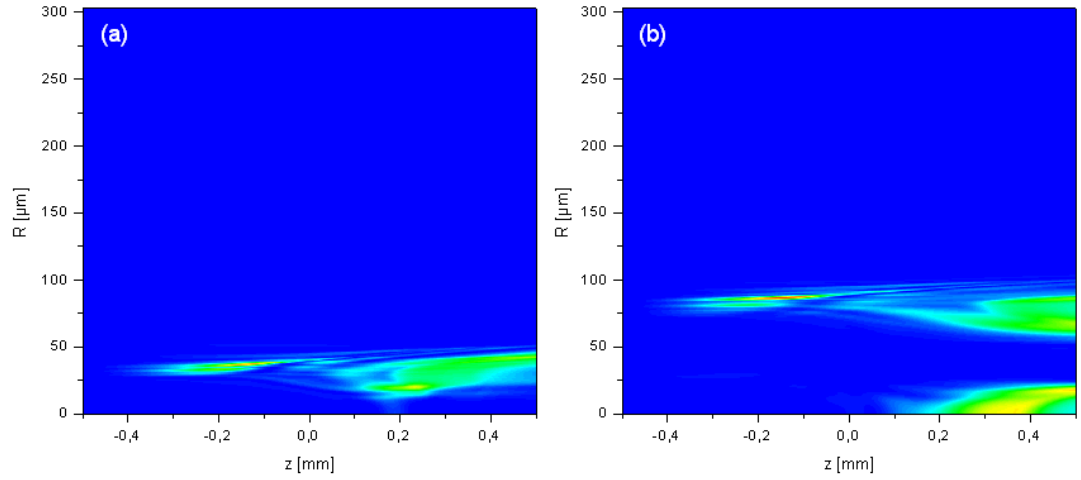


FIG. 1.21: Intensité harmonique dans le milieu au maximum de l'impulsion générée par (a) un faisceau gaussien et (b) un faisceau mis en forme. Il s'agit de l'harmonique 19 générée dans l'argon, pour un éclairement crête de $2.2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. La lame de phase utilisée est celle de la figure 1.19.

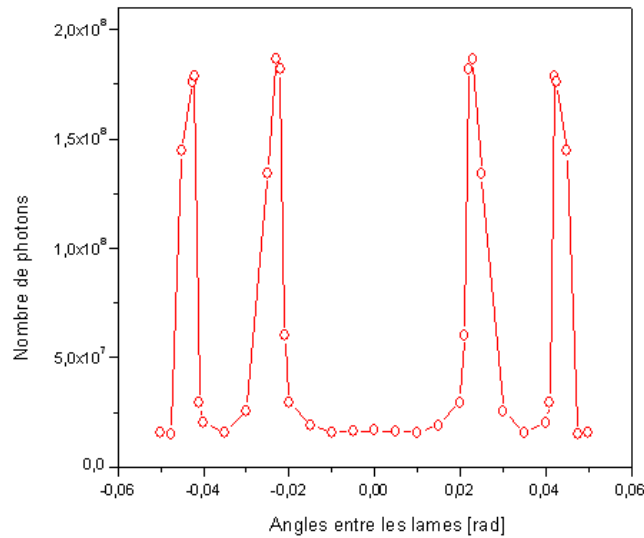


FIG. 1.22: Evolution du signal harmonique (H19) généré dans l'argon en fonction de l'angle θ_1 entre les lames de phase.

est modulé en fonction de l'angle entre les lames. Le signal est multiplié par un facteur 10 pour certaines valeurs du déphasage, et donc pour certains profils. Nous reviendrons sur ces résultats au cours du chapitre suivant.

Chapitre 2

Génération d'harmoniques d'ordres élevés par un faisceau laser mis en forme spatialement

Les différentes simulations de mise en forme d'un faisceau laser infrarouge, couplées aux estimations effectuées en utilisant une simple loi d'échelle, nous ont amenés à déterminer et à faire réaliser trois jeux de lames de phases de tailles différentes. Dans un premier temps, avant de tester l'efficacité du dispositif sur la génération d'harmoniques, nous avons testé le principe de la mise en forme par manipulation de la phase spatiale sur des systèmes lasers "modèles", à savoir un laser Hélium-Néon, qui a la particularité de présenter un front d'onde de très bonne qualité, mais qui émet un rayonnement centré à 633 nm, ainsi qu'une diode laser fibrée émettant à 800 nm, dans la même gamme de longueurs d'onde que le laser que nous avons utilisé par la suite. Le principe prouvé, et la maîtrise du dispositif acquise, nous avons étudié la génération d'harmonique par un faisceau carré ainsi généré, dans deux gaz différents (le xénon et l'argon), pour les différents jeux de lames ainsi que pour différentes longueurs focales. Ces différentes mesures furent l'objet d'une collaboration entre le SPAM, le CELIA (le Centre d'Étude des Lasers Intenses et Applications) de Bordeaux et le LOA (le Laboratoire d'Optique Appliquée) de Palaiseau.

2.1 Mise en forme du faisceau laser

2.1.1 Dispositif expérimental

Le premier jeu de lame utilisé est un ensemble composé de deux lames de silice fondue de 5 millimètres d'épaisseur. Le diamètre de la lame interne est de 9 millimètres, celui de l'anneau externe de 50 millimètres. Les deux jeux de lames supplémentaires ont une épaisseur de 4 millimètres pour des diamètres respectifs de 18 et 24 mm pour les lames internes et 50 millimètres pour les diamètres externes des anneaux. Ces trois ensembles seront par la suite appelés respectivement petites lames, lames intermédiaires et grandes lames. Les deux lames de chaque ensemble proviennent d'un même disque de silice, dans lequel un disque central a été découpé au diamètre prévu pour la petite lame. Du fait de l'épaisseur de l'appareil de découpe les diamètres externe de la petite lame et interne de l'anneau ne sont donc pas rigoureusement identiques. Nous avons ensuite inséré chacun des anneaux dans une monture de 2 pouces de diamètre très massive, afin de minimiser l'influence des vibrations de la table optique causées par le dispositif de pompage de l'expérience. Les lames internes furent placées dans des supports de métal présentés sur le détail à droite figure 2.1. La présence de l'anneau métallique entraîne un phénomène de diffraction que nous avons jugé acceptable (et les résultats expérimentaux indiquent que son effet est négligeable sur la mise en forme du faisceau). Les différents mouvements de rotation des lames sont manuels, seule la rotation autour de l'axe vertical de la petite lame était pilotée grâce à un vérin motorisé, dont le déplacement était de $0.06 \mu\text{m}$ par pas. Chacune des montures était placée sur un ensemble de deux translations manuelles, permettant les déplacements dans le plan perpendiculaire à l'axe de propagation. L'ensemble était placé sur un banc massif, dans le but de garantir l'alignement avec l'axe optique, comme on peut le voir sur la photographie du montage expérimental de la figure 2.1.

La phase la plus critique est la phase d'alignement du dispositif sur l'axe du faisceau. Pour ce faire, nous commençons par aligner le faisceau laser sur le dispositif de génération et de détection d'harmoniques, sans les lames. Puis nous insérons la lame externe dans le faisceau. Les deux translations de sa monture nous permettaient alors de la centrer sur le faisceau laser, puis un trou au centre d'une pastille insérée sur le trajet du faisceau nous permettait de rendre l'anneau perpendiculaire au faisceau incident par autocollimation. Enfin, nous insérons la lame centrale, en avant de la lame externe, sur le banc optique. De même, les

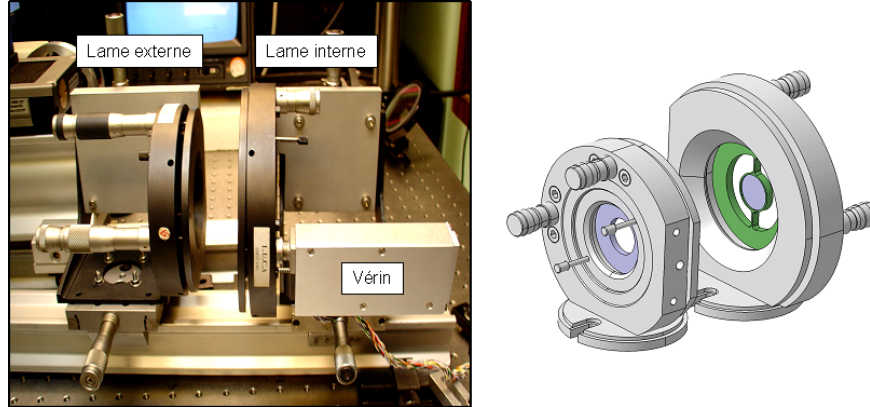


FIG. 2.1: Montage expérimental des lames de phase. La rotation verticale de la lame interne est commandée par un vérin motorisé. Dans ce schéma particulier, le laser vient de la droite de l'image. Sur la droite, détail du montage des deux lames.

deux translations nous permettaient de la centrer sur le faisceau, puis un réglage par autocollimation était nécessaire pour la rendre parallèle à la seconde lame.

Nous avons utilisé trois sources lasers différentes, deux pour tester le principe de la manipulation de la phase spatiale, une pour la génération d'harmonique. Le premier laser utilisé était un laser de référence, un laser continu Hélium-Néon. Il a l'inconvénient de générer un rayonnement à 633 nm, longueur d'onde différente de la longueur d'onde du laser femtoseconde que nous utiliserons par la suite, mais il présente un front d'onde gaussien quasi parfait. Son diamètre initial étant trop faible par rapport à nos lames de phase (environ un millimètre), nous avons dû utiliser un dispositif afocal afin de l'amener à environ vingt millimètres.

Le deuxième laser était lui aussi un laser test. Il s'agit d'une diode laser fibrée monomode, émettant à 800 nm. Pour cette source l'emploi d'un dispositif afocal s'est révélé nécessaire.

Enfin, le laser générant les harmoniques était le serveur LUCA (pour Laser Ultracourt Accordable) du SPAM. Ce laser Titane-Saphir, basé sur la technologie CPA (Chirped Pulse Amplification ([Strickland and Mourou, 1985](#))), délivre des impulsions centrées à 800nm, dont la durée est de 50 fs et d'énergie allant jusqu'à 80mJ. Il peut être divisé en trois faisceaux différents, permettant à trois dispositifs expérimentaux de fonctionner en parallèle. Notre voie dispose d'un compresseur indépendant des autres.

Tout au long de l'expérience, mais plus particulièrement lors de cette première phase, nous avons voulu visualiser la mise en forme du faisceau infrarouge di-

rectement. Pour ce faire, après les lames de phase, nous avons placé une lentille de focalisation sur un banc de translation motorisée. Après cette dernière, nous avons prélevé une faible partie du faisceau (grâce à une lame réfléchissant environ 1/1000 du faisceau) que nous avons repliée parallèlement au faisceau principal. Une caméra dotée d'un objectif de microscope, pouvant se déplacer sur l'axe optique autour de la position du foyer, permettait alors d'étudier le profil spatial du faisceau (voir figure 2.8).

2.1.2 Étude de la mise en forme spatiale du faisceau laser

2.1.2.1 Effet des lames de phase

Dans un premier temps, nous nous sommes concentrés sur l'étude de l'effet des lames de phase sur le laser Hélium-Néon. Nous avons utilisé les lames les plus petites. Le diamètre de la lame interne est de 9 mm, alors que le diamètre externe du faisceau est réglable grâce à un diaphragme placé en amont du dispositif. La figure 2.2 présente un ensemble de coupes transverses du faisceau laser au foyer en fonction du déphasage. En (a), on aperçoit la tache focale obtenue lorsque les deux lames sont parallèles ($\Phi = 0$). Une coupe de cette image indique clairement que le profil est gaussien. Lorsque le diamètre extérieur est fixé à 12 mm, on peut observer un profil soit en anneau, avec un minimum d'intensité au centre ($\Phi = \pi$)(b), ou un profil carré, plus large que le profil gaussien initial ($\Phi = 0.8\pi$)(c). En comparant les profils radiaux (d) et (f), on peut voir que la manipulation de la phase spatiale a effectivement permis de changer le profil gaussien initial en un profil carré (ou supergaussien d'ordre 3). La tache focale a été élargie d'un facteur 2.3, proche du facteur prévu par les simulations. On voit de plus les premiers anneaux secondaires, lesquels contiennent une partie importante de l'énergie initiale.

Nous avons ensuite testé le dispositif avec le laser infrarouge du serveur LUCA que nous allons utiliser pour la génération d'harmoniques. Comme on peut le voir sur la figure 2.3, la mise en forme par manipulation de la phase spatiale grâce aux lames de phase est dans ce cas aussi très efficace. L'élargissement du faisceau au foyer est d'un facteur 2.1, légèrement inférieur à ce qui avait été obtenu à partir du faisceau d'Hélium-Néon, ce qui peut être lié à la phase du champ laser infrarouge. La comparaison avec le calcul montre que les profils obtenus sont toujours plus étroits que les profils théoriques, ce que l'on peut attribuer à une connaissance imparfaite des paramètres du laser infrarouge (dont le M^2 a certainement été sur

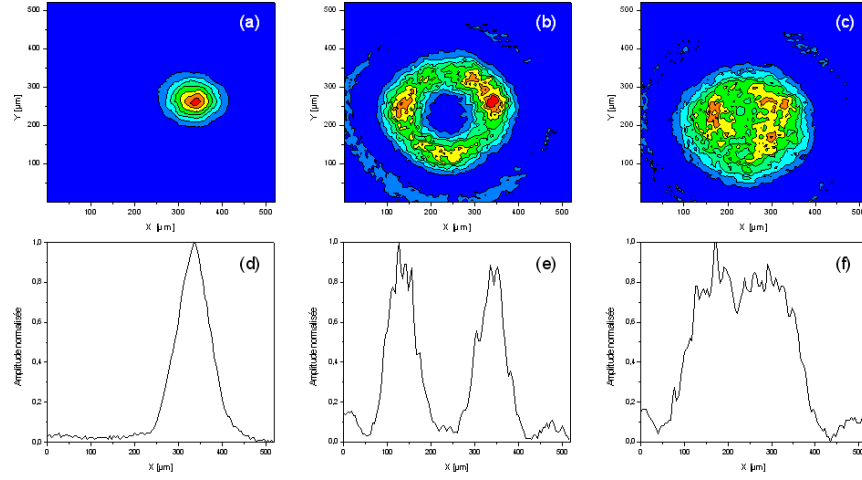


FIG. 2.2: Effet des petites lames de phase sur le faisceau du laser He-Ne. En (a), (b) et (c) les distributions spatiales au foyer ($z=0$) du champ laser dans trois configurations (déphasage $\Phi = 0, \pi$ radians et 0.8π radians). En (d), (e) et (f) les coupes de chacun des profils.

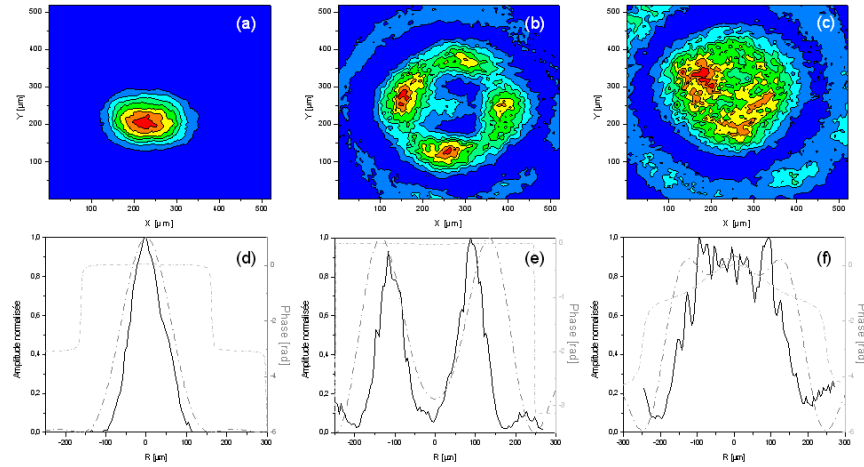


FIG. 2.3: Effet des petites lames de phase sur le faisceau du laser LUCA. En (a), (b) et (c) les distributions spatiales au foyer ($z=0$) du champ laser dans trois configurations (déphasage $\Phi = 0, \pi$ radians et 0.8π radians). En (d), (e) et (f) les coupes de chacun des profils (ligne continue). La ligne pointillée grise correspond au profil d'intensité calculé, la ligne pointillée claire à la phase calculée.

estimé).

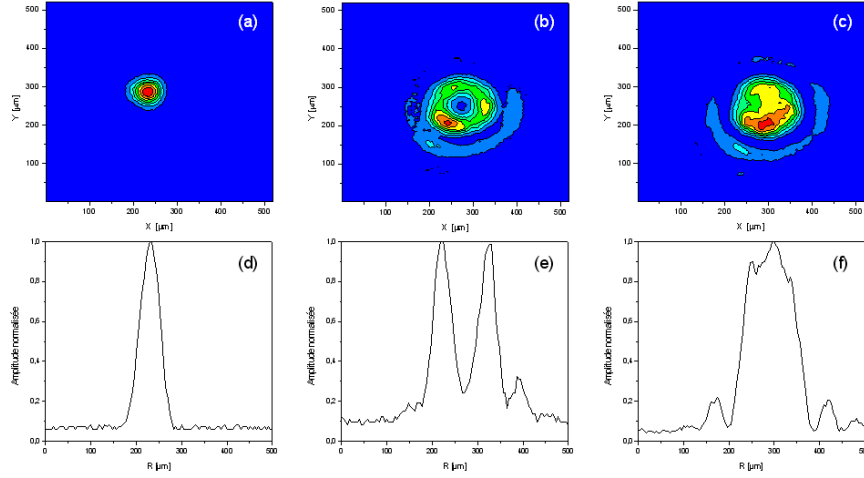


FIG. 2.4: Effet des lames de phase de taille intermédiaire sur le faisceau d'une diode laser. En (a), (b) et (c) les distributions spatiales au foyer ($z=0$) du champ laser dans trois configurations (déphasage $\Phi = 0, \pi$ radians et 0.8π radians). En (d), (e) et (f) les coupes de chacun des profils.

2.1.2.2 Effet de la taille des lames

Les simulations que nous avons effectuées supposaient un front d'onde du laser sur les lames de phase plan. Cependant, la qualité du front d'onde d'un faisceau se dégrade sur les bords. Nous avons par conséquent testé aussi l'effet des lames de tailles supérieures sur nos différents lasers.

L'utilisation des lames intermédiaires impose une ouverture du diaphragme extérieur supérieure à 20 mm. Il nous a donc fallu utiliser un ensemble afocal afin d'augmenter le diamètre des faisceaux lasers de référence. Ce système, délicat à régler, est cependant une source d'aberrations. C'est pourquoi nous avons remplacé le laser Hélium-Néon par une diode laser émettant à 800 nm dont le faisceau de sortie était plus large. Nous avons comparé les résultats ainsi obtenus avec ceux du laser LUCA et de la petite lame de phase. Les figures 2.4 et 2.5 représentent les profils des faisceaux mesurés au foyer dans le cas d'un faisceau non mis en forme ($\Phi = 0$, (a) et (d)), annulaire ($\Phi = \pi$, (b) et (e)) et carré ($\Phi = 0.8\pi$, (c) et (f)). Le diamètre de la lame interne est de 18 mm (lame intermédiaire) et le diamètre du diaphragme est de 24.5 mm. Dans le cas de la diode laser, l'efficacité de la mise en forme est toujours importante. L'anneau et le profil carré sont parfaitement définis. L'élargissement du faisceau est alors d'un facteur 2.

Dans le cas du laser LUCA par contre, la structure annulaire est moins bien

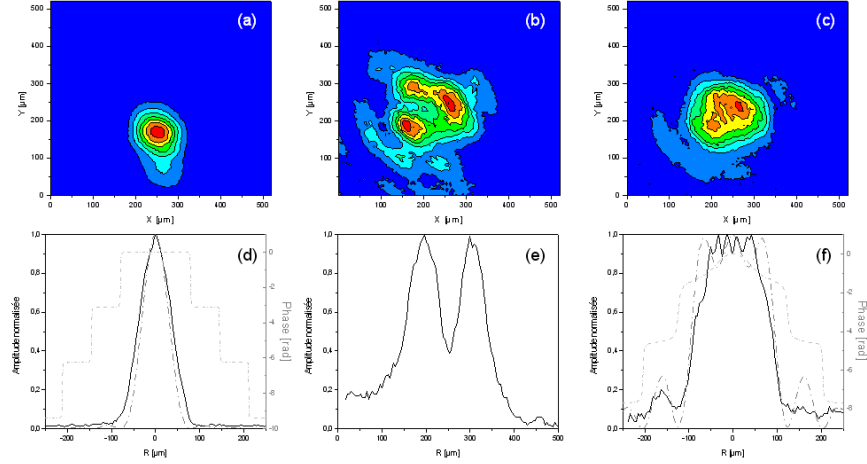


FIG. 2.5: Effet des lames de phase de taille intermédiaire sur le faisceau du laser LUCA. En (a), (b) et (c) les distributions spatiales au foyer ($z=0$) du champ laser dans trois configurations (déphasage $\Phi = 0, \pi$ radians et 0.8π radians). En (d), (e) et (f) les coupes de chacun des profils. La ligne pointillée grise correspond au profil d'intensité calculé, la ligne pointillée claire à la phase calculée.

définie, et l'élargissement du profil entre les cas gaussien et carré n'est plus que d'un facteur 1.5 environ, ce qui est lié à la qualité du front d'onde du laser. La différence avec le calcul est plus importante que dans le cas des petites lames. Nous avons de plus essayé de mettre en forme le faisceau en utilisant le dernier jeu de lames. Dans ce cas, le diamètre interne de 24 mm impose une ouverture du diaphragme de 31mm, pour un faisceau de 38 mm de diamètre. Il nous a alors été impossible d'observer les anneaux ou un profil carré suffisamment bien défini. Nous avons alors essayé de corriger le front d'onde à l'aide d'un miroir déformable. Couplé à une mesure du front d'onde du laser infrarouge par un dispositif de Shack-Hartmann, un logiciel permet de calculer les tensions à appliquer aux 19 actionneurs du miroir afin de rendre la phase spatiale plate au niveau des lames. Cependant, cela ne nous a pas permis d'améliorer la mise en forme. Au contraire, même avec les lames intermédiaires nous n'avons pas réussi à obtenir de profil annulaire (Fig. 2.6). Il s'est avéré que notre miroir ne permettait que de corriger les aberrations qu'il introduisait lui-même dans le faisceau. Cela est sans doute lié au nombre limité d'actionneurs. Néanmoins, cela démontre l'importance de la qualité du front d'onde sur les lames de phase.

La figure 2.7 compare l'évolution de l'intensité infrarouge le long de l'axe de propagation dans le cas du faisceau mis en forme (a) et gaussien (b). La manipulation

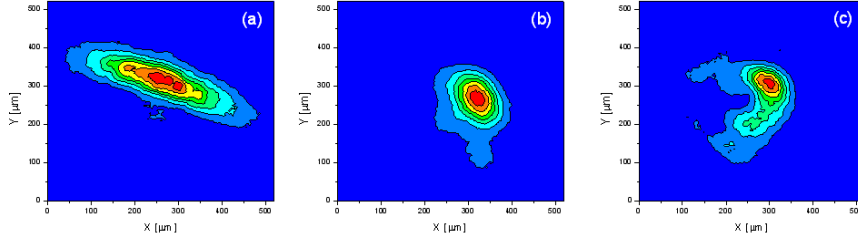


FIG. 2.6: Effet des lames de phase de taille intermédiaire sur le faisceau LUCA. Un miroir déformable est placé avant les lames de phase. En (a) et (b), le déphasage introduit par les lames est nul. En (c), $\Phi = \pi$ radians. En (a), le miroir déformable n'est pas activé. En (b) et (c), la correction du front d'onde est activée.

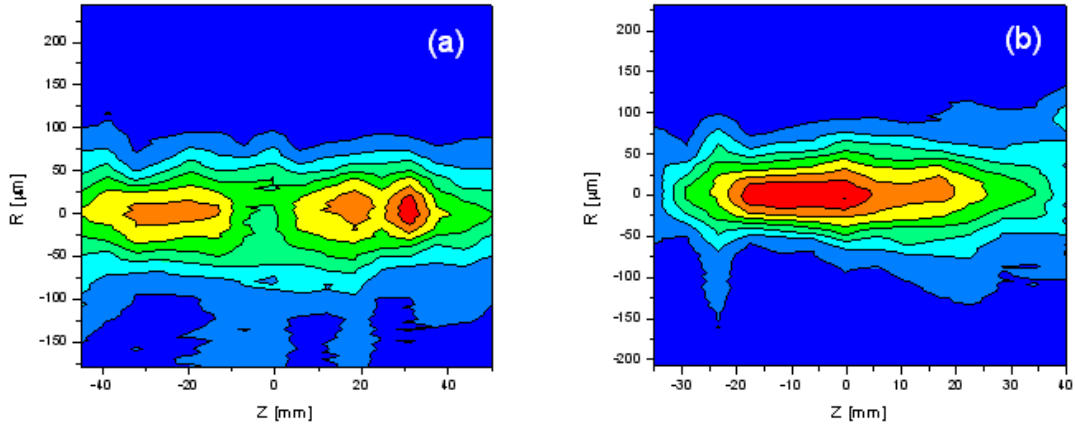


FIG. 2.7: Mesure du profil infrarouge autour du foyer dans le cas des faisceaux mis en forme (a) et gaussien (b). Le laser se propage de la gauche vers la droite suivant l'axe Oz.

de la phase spatiale avant focalisation a permis d'élargir le faisceau au foyer et de l'élargir, comme le prévoyaient les simulations de la figure 1.18.

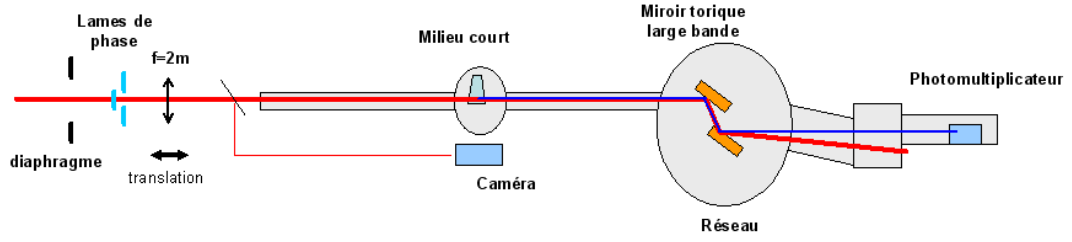


FIG. 2.8: Dispositif expérimental pour l'étude de la génération d'harmoniques par un faisceau mis en forme.

2.2 Étude de la génération d'harmoniques par un faisceau carré

2.2.1 Dispositif expérimental

Afin d'étudier la génération d'harmoniques par le faisceau carré ainsi obtenu, nous avons placé le dispositif de lames de phase présenté précédemment sur le dispositif expérimental présenté figure 2.8. Le faisceau, après passage au travers des lames de phase, est focalisé par une lentille de 2m dans un jet de gaz rare court (du xénon ou de l'argon). Le milieu doit être peu étendu le long de l'axe de propagation (1 mm environ) car les simulations montrent que le profil n'est carré que sur approximativement cette longueur. Le rayonnement harmonique généré sur l'axe est focalisé à nouveau grâce à un miroir torique large bande d'un mètre de longueur focale à l'entrée d'un spectromètre. Un réseau permet de sélectionner la longueur d'onde à étudier. La détection se fait en champ lointain grâce à un photomultiplicateur. Il est aussi possible d'imager le profil spatial des harmoniques en champ lointain en remplaçant ce détecteur par des galettes de microcanaux. Une caméra visible permet alors d'imager un écran à phosphore situé à l'arrière des galettes. Un ensemble constitué d'une lame demi-onde et de deux polariseurs nous permet de contrôler l'énergie des impulsions laser. De plus, nous avons conservé le dispositif de contrôle de la tache focale décrit au paragraphe 2.1.1.

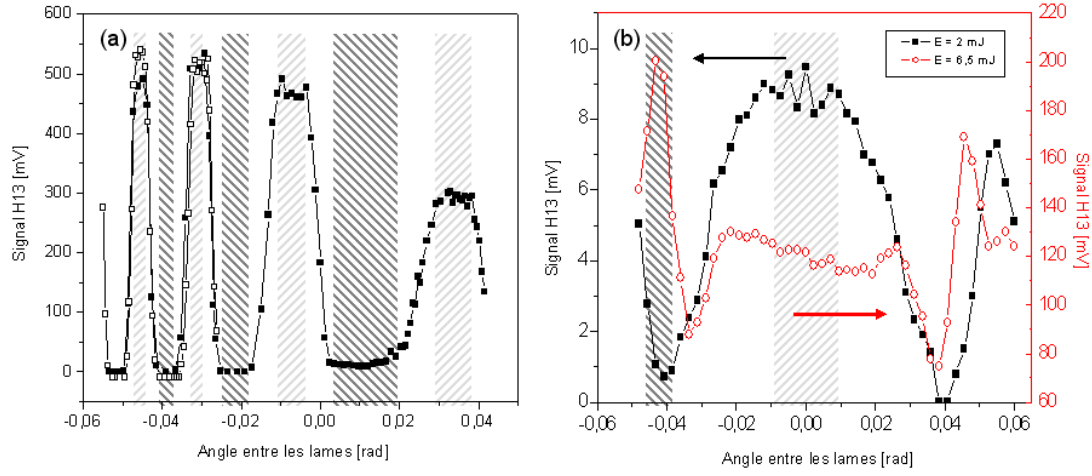


FIG. 2.9: Effet du déphasage introduit par les lames de phase sur l'harmonique 13. (a) Mise en forme par les petites lames de phase (H13 générée dans le xénon à 2.4 mJ). (b) Mise en forme par les lames intermédiaires (carrés noirs : H13 générée dans l'argon, $E=2\text{mJ}$; cercles rouges : H13 générée dans l'argon, $E=6.5\text{ mJ}$). Le foyer est placé au centre du jet de génération ($z=0$). Les zones hachurées claires correspondent à un profil du faisceau infrarouge gaussien, les zones foncées à un profil carré.

2.2.2 Résultats expérimentaux

2.2.2.1 Influence du déphasage

Nous avons mesuré l'évolution du signal harmonique en fonction du déphasage introduit par les lames. La figure 2.9 présente les résultats obtenus pour une mise en phase avec les petites lames (a) et les lames intermédiaires (b). Dans les deux cas, il s'agit de l'harmonique 13 générée dans le xénon (a) ou l'argon (b). La modulation du signal avec le déphasage est clairement visible dans les deux cas de figure, mais ses conséquences sont différentes. Dans le cas des petites lames, comme pour la génération à faible énergie avec les lames plus grandes, le signal est très faible lorsque le profil est carré (zones foncées) et maximal pour un profil gaussien (zones claires). Par contre, à plus haute énergie, l'inverse se produit : le signal devient maximal lorsque le profil est carré (Fig. (b), carrés noirs). Ce comportement est bien reproduit par les simulations présentées figure 2.10. Lors de la génération de l'harmonique 19 dans l'argon, si le foyer est placé au niveau du jet, aux faibles énergies le signal est maximal lorsque le faisceau est gaussien, minimal lorsque le profil est carré (courbe a), alors que l'inverse se produit à plus forte énergie (courbe b).

2.2. ÉTUDE DE LA GÉNÉRATION D'HARMONIQUES PAR UN FAISCEAU CARRÉ

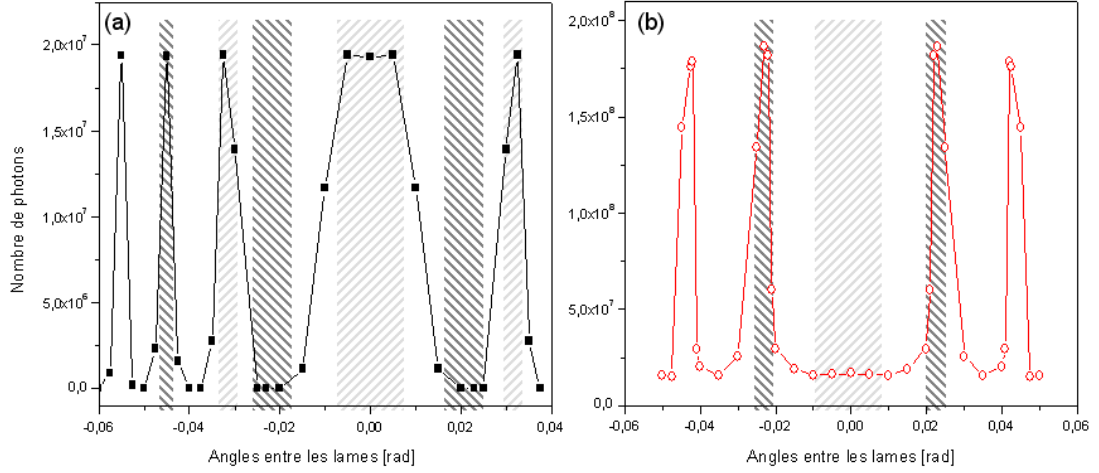


FIG. 2.10: Simulation de l'effet du déphasage introduit par les lames de phase sur l'harmonique 19. (a) Mise en forme par les petites lames de phase (H19 générée dans l'argon, E faible). (b) Mise en forme par les lames intermédiaires (H19 générée dans l'argon, E grande). Le foyer est placé au centre du jet de génération ($z=0$). Les zones hachurées claires correspondent à un profil du faisceau infrarouge gaussien, les zones foncées à un profil carré.

Ces deux comportements opposés en fonction de l'énergie des impulsions sont liés à l'éclairement dans les deux configurations. Dans le cas du faisceau gaussien (l'angle entre les lames est nul), le signal est maximal au foyer (cercles rouges). L'éclairement maximal sur l'axe y est alors de $1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, proche de l'éclairement de saturation du xénon. Par contre, dans le cas du faisceau mis en forme (ici avec les petites lames, réglées de telle sorte que le profil au foyer soit carré), l'éclairement au foyer n'est plus que de $1 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$.

Nous pouvons donc conclure que si la génération d'harmoniques s'effectue au foyer de la lentille, lorsque l'énergie du laser est faible, un faisceau gaussien est préférable. Par contre, si l'énergie du laser est suffisante, le profil carré obtenu par manipulation de la phase spatiale est plus favorable. Il nous reste cependant à étudier l'influence de la focalisation sur le signal harmonique.

2.2.2.2 Influence de la position du jet

Afin de comprendre l'effet de l'accord de phase, nous étudions maintenant l'influence de la position du jet. Dans le cas d'un faisceau gaussien l'efficacité maximale n'est pas nécessairement atteinte lorsque le foyer est situé dans le milieu

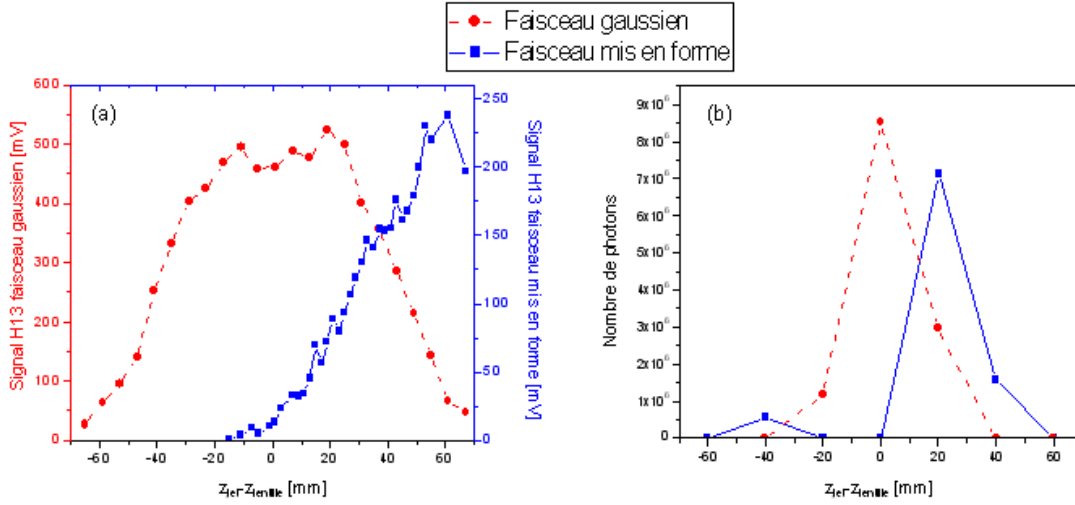


FIG. 2.11: Évolution du signal harmonique en fonction de la position relative du foyer dans le jet pour une énergie laser faible. Carrés bleus : faisceau mis en forme par les petites lames de phase. Ronds rouges : faisceau gaussien. (a) Courbes expérimentales. H13 générée dans le xénon, $E_{\text{laser}} = 2.4$ mJ. (b) Simulations. H19 générée dans l'argon, $E_{\text{laser}} = 2$ mJ.

(figure 1.6). Par conséquent, il est nécessaire d'effectuer en parallèle à ces mesures une étude de l'influence de la position du foyer par rapport au jet.

Pour une énergie laser faible, l'optimum est atteint, dans le cas de la génération par un faisceau gaussien, lorsque l'on focalise le faisceau dans le milieu de génération. Par contre, l'éclairement du faisceau carré est trop faible, et il faut écarter le foyer du milieu (de 5 cm environ) afin de retrouver un profil gaussien et un éclairement suffisant (Fig. 2.11(a)). La figure 2.11(b) présente le résultat de simulations effectuées pour des conditions similaires, et qui reproduisent effectivement ce comportement.

L'utilisation des petites lames de phase impose de fermer le faisceau à un diamètre de 12 mm. L'énergie maximale par impulsion est alors de 2 mJ, trop faible pour générer efficacement des harmoniques. Par conséquent, nous avons concentré notre étude sur la manipulation de la phase spatiale par les lames intermédiaires. Nous avons écarté l'utilisation d'un télescope afin de ne pas détériorer la qualité du front d'onde.

La figure 2.12(a) représente l'évolution du signal harmonique en fonction de la position du foyer par rapport au milieu de génération pour une énergie laser de 11 mJ. Si la position du foyer est fixée au niveau du jet (ligne grise), le faisceau mis en

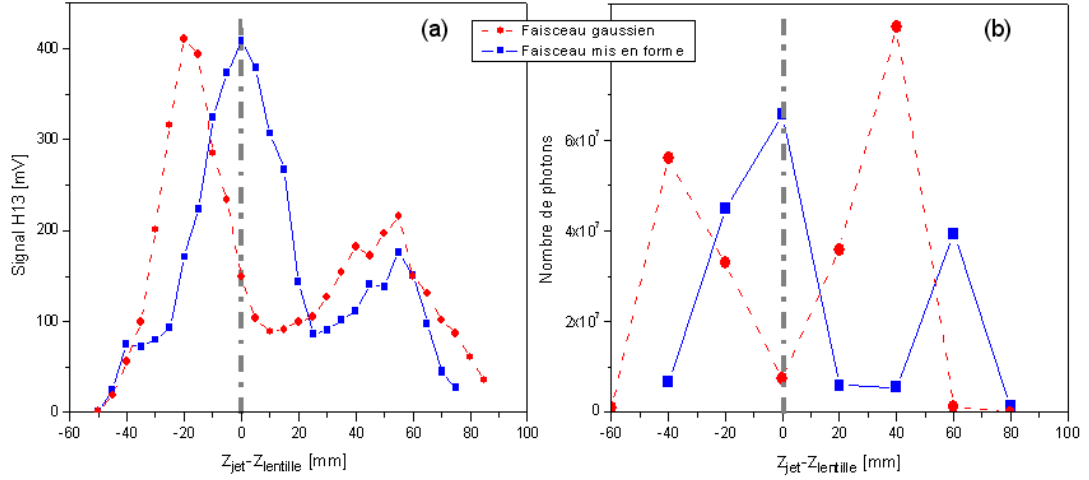


FIG. 2.12: Évolution du signal harmonique en fonction de la position relative du foyer dans le jet. Cercles rouges : faisceau mis en forme. La ligne pointillée indique la position pour laquelle le foyer se situe au niveau du jet. (a) Courbes expérimentales. H13 générée dans l'argon, $E_{\text{laser}}=11$ mJ. (b) Simulations. H19 générée dans l'argon, $E_{\text{laser}}=8$ mJ.

forme est plus efficace que le faisceau gaussien, pour lequel l'éclairement au foyer est trop important ($3 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$). Déplacer la lentille par rapport au jet permet, dans le cas du faisceau gaussien, d'augmenter le signal mesuré. En effet, plus on s'écarte du foyer, plus la largeur du faisceau augmente, et donc l'éclairement diminue. Lorsque l'éclairement devient égal à l'éclairement de saturation du gaz, l'efficacité de génération est maximale (à condition que cette position ne soit pas trop éloignée du foyer. On considère généralement que le jet de gaz doit être placé dans la zone de Rayleigh du faisceau). Dans le cas présenté Fig. 2.12(a), le signal mesuré à la position optimale du faisceau gaussien (lorsque le foyer se situe 2 cm après le jet) est égal au signal généré par le faisceau carré. Les simulations numériques permettent de reproduire qualitativement ces résultats (Fig. 2.12(b)).

Pour l'ensemble des mesures que nous avons effectuées, nous avons pu trouver une position de la lentille pour laquelle le signal obtenu par le faisceau gaussien était égal au signal obtenu par le profil carré. Afin de savoir si une configuration est plus efficace que l'autre, il nous faut encore comprendre quelle est l'influence de l'éclairement sur l'efficacité de la génération.

2.2.2.3 Influence de l'éclairement

Tout comme dans le cas d'un faisceau gaussien pour lequel l'optimum de génération se situe à la position pour laquelle l'éclairement dans le milieu est égal à l'éclairement de saturation, la position optimale pour le faisceau mis en forme dépend de l'éclairement. Si l'éclairement au foyer -c'est à dire à la position du profil carré- est trop faible ou trop important, le signal émis sera maximal pour un autre profil. Sur la figure 2.13(a) la position du profil carré est indiquée par un trait continu gris. Lorsque l'énergie est de 3 mJ (courbe pleine) ou 16 mJ (tirets courts), le profil optimal n'est pas le profil carré. Afin d'utiliser plus de 16 mJ, il faut définir un nouveau couple de lames afin de générer un profil carré plus large que celui-ci. Dans le cas contraire, on observe une saturation, puis une diminution, du signal, semblable ce que l'on obtient lorsque l'éclairement augmente et que l'on génère avec un faisceau gaussien. La figure 2.13(b) représente l'évolution du signal mesuré de l'harmonique 13 générée par un profil carré en fonction de l'éclairement. Le comportement décrit précédemment y est clairement visible : le signal augmente avec l'éclairement tant que celui-ci reste inférieur à environ $2.5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, puis on observe une saturation. Bien que l'ordre harmonique pris en compte pour les calculs soit différent (il s'agit de l'ordre 19), les simulations, représentées par la courbe rouge sur la figure, reproduisent ce comportement.

2.2.2.4 Étude de la divergence du faisceau harmonique

Le nombre de photons n'est pas la seule caractéristique intéressante du rayonnement harmonique. Afin de pouvoir l'utiliser, il est nécessaire de pouvoir le transporter de la source jusqu'à l'expérience, puis de pouvoir le focaliser. Une première condition est de ce fait la qualité du profil harmonique en champ lointain. Salières et al. (2001) ont montré que la divergence des harmoniques générées par un faisceau gaussien dépendait de la focalisation. Lorsque le foyer du laser se trouve avant le jet, le faisceau UV est généré sur l'axe et sa divergence est plus faible que celle du laser infrarouge. Par contre, dans le cas d'une focalisation dans ou après le jet, l'accord de phase est réalisé hors axe et le faisceau UV devient annulaire. Nous avons remplacé le photomultiplicateur par des galettes de microcanaux afin d'observer le profil des harmoniques en champ lointain et d'évaluer la divergence du faisceau émis par un profil annulaire.

Nous avons effectué une première série de mesures pour une énergie laser de 3 mJ. Dans ces conditions, nous avons vu que l'éclairement du profil carré était

2.2. ÉTUDE DE LA GÉNÉRATION D'HARMONIQUES PAR UN FAISCEAU CARRÉ

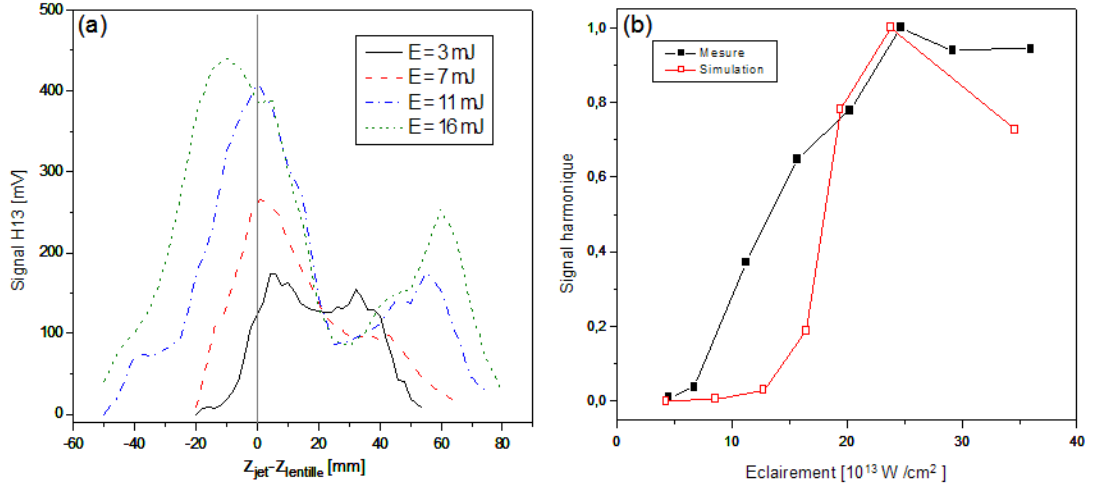


FIG. 2.13: (a) Évolution du signal de l'harmonique 13 générée dans l'argon par un faisceau mis en forme en fonction de la position de la lentille par rapport au jet pour différentes énergies. La ligne grise indique la position du profil carré. (b) Évolution du nombre de photons harmoniques générés par un faisceau mis en forme (profil carré) en fonction de l'éclairement. Les carrés pleins correspondent aux résultats expérimentaux, les carrés blancs aux simulations (H19).

inférieur à l'éclairement de saturation, mais que dans le cas du faisceau gaussien la position optimale était déjà légèrement écartée du foyer. La figure 2.14 compare les divergences mesurées expérimentalement dans trois cas. La courbe rouge en pointillés représente la divergence de l'harmonique 19 générée dans l'argon par un faisceau gaussien focalisé dans le jet de gaz. On aperçoit, autour du pic central dû à la trajectoire courte, un épaulement provenant de la trajectoire longue. Nous avons vu précédemment que le nombre maximum de photons était généré lorsque la focalisation avait lieu un peu avant le jet. La courbe noire en traits-points a été réalisée dans ces mêmes conditions et est issue de l'image (b), mesurée directement derrière les galettes. Enfin, l'harmonique 19 générée par un faisceau mis en forme est visible sur la courbe bleue continue, provenant de l'image (c). L'asymétrie des taches est due à un désalignement du miroir torique. De plus, l'axe horizontal représente la convolution entre l'effet de divergence du faisceau et l'effet de dispersion du réseau. C'est pourquoi nous utiliserons la dimension verticale pour les mesures de divergences. On peut remarquer que le faisceau harmonique est alors moins divergent que dans les cas précédents. Dans le cas du faisceau mis en forme, la divergence du faisceau harmonique est de 2.7 mrad, contre 3.7 et 3.8 pour le faisceau gaussien focalisé dans le jet et focalisé hors du jet.

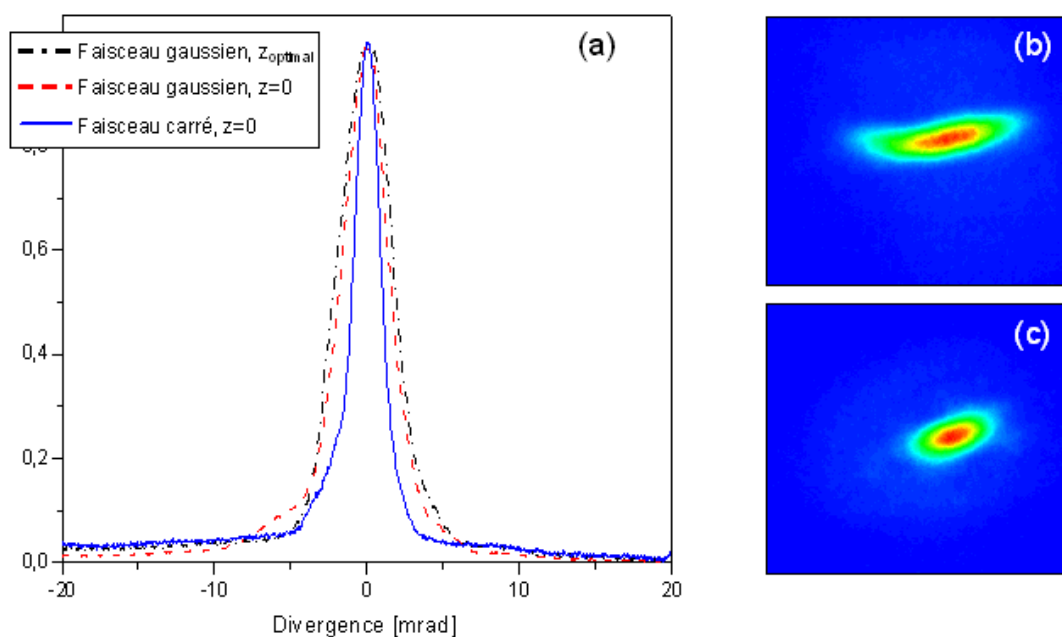


FIG. 2.14: Mesure de la divergence de l'harmonique 19 générée dans l'argon par un faisceau de 3 mJ (a). Les images représentent les profils spatiaux mesurés par les galettes de microcanaux dans les cas (b) d'un faisceau gaussien focalisé hors du jet (courbe noire en traits-points) et (c) d'un faisceau carré au foyer (courbe bleue continue).

La qualité du faisceau harmonique généré par un profil carré est donc meilleure que lors de l'utilisation d'un faisceau gaussien car la génération a lieu au foyer du faisceau. Nous avons vu que lorsque l'énergie du laser augmente il était nécessaire d'éloigner le point de focalisation du milieu de génération (sous peine de dépasser l'éclairement de saturation). Dans ce cas, il est légitime de penser que la qualité spatiale du faisceau harmonique se dégrade de plus en plus au fur et à mesure que l'énergie augmente, si la génération est effectuée avec un faisceau gaussien. Dans le cas du faisceau mis en forme, comme la génération a toujours lieu au foyer, tant que l'éclairement laser reste inférieur à la valeur critique la qualité du faisceau harmonique ne doit pas varier. La vérification expérimentale de cette hypothèse s'est cependant soldée par un échec, causé par un endommagement du miroir torique couplé à une instabilité des images mesurées. En effet, nous avons utilisé une énergie laser trop importante, ce qui a marqué le miroir. La diffraction du rayonnement harmonique par ce défaut entraîne une déformation importante du profil harmonique en champ lointain. De plus, les fluctuations de l'image étaient trop rapides pour que l'on puisse les exploiter.

Nous avons alors effectué des simulations afin de comparer les divergences obtenues dans les différents cas de figure. Lorsque l'on fixe l'éclairement de génération à la valeur de saturation, le faisceau harmonique généré par un faisceau carré présente un pic central moins divergent que dans le cas d'une génération par un faisceau gaussien focalisé dans le milieu gazeux, mais possède une partie annulaire légèrement plus importante. Puis nous avons décalé la position du foyer par rapport au jet, jusqu'à obtenir le nombre de photons maximal (dans le cas du faisceau gaussien). Dans ce cas, le profil harmonique en champ lointain est fortement divergent.

Cependant, comme nous avons pour cette simulation utilisé une lentille de 2 mètres de longueur focale, il a fallu diminuer l'énergie du faisceau. Pour conserver une énergie constante, il faut focaliser le faisceau après le jet de gaz. Dans ce cas cependant, nos calculs retrouvent un faisceau annulaire fortement divergent.

Ces calculs confirment donc notre hypothèse : lorsque l'on veut utiliser des énergies importantes, le faisceau harmonique est moins divergent lorsque l'on utilise un faisceau mis en forme, focalisé dans le jet de gaz, que lorsque l'on focalise un faisceau gaussien hors du milieu gazeux.

2.2.3 Effet de volume ou augmentation de l'efficacité de génération ?

2.2.3.1 Simulations

Afin de mettre en évidence un éventuel effet de l'accord de phase sur la génération d'harmoniques par un faisceau carré, il est nécessaire de comparer les résultats obtenus dans des conditions les plus semblables possibles au niveau du jet de génération. Pour cela, nous allons étudier le signal harmonique mesuré en fonction du profil du faisceau pour des éclairagements égaux. Ce type de comparaison est bien plus facile à réaliser à partir des simulations, pour lesquelles le paramètre immédiatement ajustable est l'éclairement et non pas l'énergie laser.

Nous nous sommes placés à un éclairage de $2.7 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ dans le milieu de génération, et avons fait varier l'angle entre les deux lames de phase (et donc le déphasage introduit entre les parties interne et externe du faisceau) de façon à passer d'un profil gaussien à un profil carré. On observe alors une augmentation du nombre de photons générés d'un facteur 8.5, alors que dans le même temps le rayon du profil s'est élargi d'un facteur 2. L'augmentation du signal est donc supérieure à l'augmentation du volume de génération. Les effets d'accord de phase semblent donc intervenir dans le phénomène.

Nous avons vu d'après les résultats expérimentaux qu'il était possible d'augmenter le signal en jouant sur la position du foyer par rapport au jet de gaz. Nous avons donc éloigné la lentille du jet, tout en conservant l'éclairement dans le jet constant. Cela revient donc à élargir le rayon du faisceau. Nous avons ainsi placé le foyer du faisceau 2 cm environ avant le milieu de génération, de façon à obtenir une largeur à $1/e^2$ de $110 \text{ } \mu\text{m}$ (Fig. 2.15(b), pointillés courts verts). Le nombre de photons générés dans ces conditions est légèrement supérieur à celui obtenu précédemment, mais toujours bien inférieur au cas du profil carré ($3.3 \cdot 10^7$ au lieu de $2.6 \cdot 10^8$, Fig. 2.15(a)). En effet, bien que l'éclairement crête et la largeur des profils soient identiques dans les deux cas, l'énergie contenue dans le profil carré est toujours supérieure à celle contenue dans le profil dû au faisceau gaussien.

De ce fait, nous avons placé le foyer à 3 cm du jet. Le profil du faisceau est encore plus élargi, et a la même largeur à mi hauteur que le profil carré. Dans ce cas, l'énergie contenue dans chacune des taches focales est sensiblement la même. Cependant, le nombre de photons générés est toujours trois fois moindre dans le cas du faisceau gaussien ($7.8 \cdot 10^7$) que dans celui du faisceau carré. Nous avons ensuite placé le foyer après le milieu de génération. Les profils du faisceau

2.2. ÉTUDE DE LA GÉNÉRATION D'HARMONIQUES PAR UN FAISCEAU CARRÉ

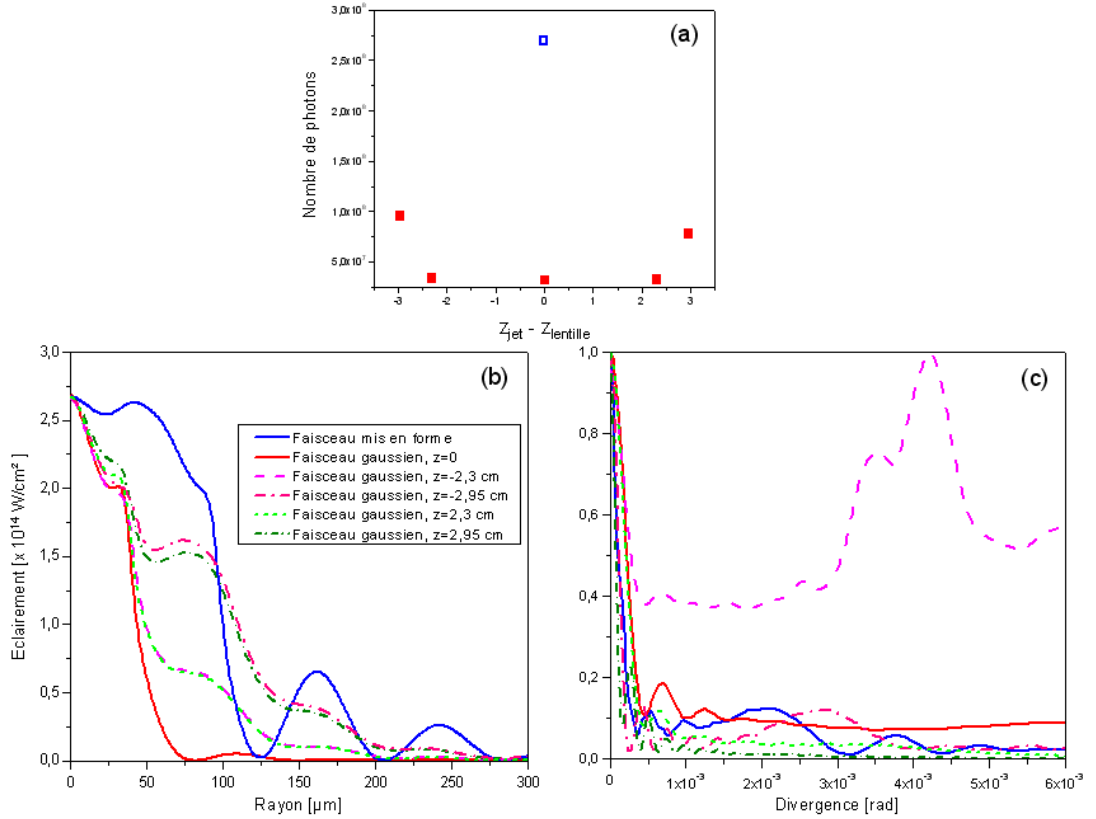


FIG. 2.15: Étude de la génération de l'harmonique 19 dans l'argon pour un éclairement donné ($2.7 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$) en fonction de la position de la focalisation. (a) Nombre de photons en fonction de la position relative foyer-jet (une valeur négative correspond à une focalisation après le jet). Carré pleins : faisceau gaussien. Carré blanc : profil carré. (b) Profils utilisés pour le calcul. (c) Divergences des faisceaux harmoniques générés.

laser sont les mêmes que ceux obtenus aux positions symétriques. Cependant, le nombre de photons générés est légèrement supérieur (bien que toujours largement inférieur au cas du profil carré). Cela montre l'importance de l'accord de phase. Nous avons de plus calculé la divergence des différents faisceaux harmoniques (Fig. 2.15(c)). Lorsque le faisceau est focalisé 3 cm après le jet, le rayonnement est clairement annulaire. Dans le cas de la génération par un profil carré, la structure annulaire est beaucoup moins importante. De plus, la divergence du faisceau est alors inférieure à celle obtenue pour la focalisation optimale du faisceau gaussien. En revanche, lorsque le faisceau laser est focalisé avant le jet, sa divergence est plus faible.

Les simulations montrent donc que l'utilisation d'un faisceau dont le profil est élargi par ces lames de phase permet d'augmenter le nombre de photons générés de façon plus importante que ne le laisserait penser la simple augmentation du volume de génération. Les effets macroscopiques d'accord de phase au cours de la propagation des harmoniques dans le milieu gazeux tiennent donc un rôle très important.

2.2.3.2 Expérience

Afin de vérifier la conclusion obtenue à partir des simulations expérimentalement, nous avons effectué des mesures du signal harmonique en fonction de la position de la focalisation pour différentes énergies laser dans le cas d'un faisceau gaussien. Pour chacune de ces énergies, nous avons déterminé la valeur maximale du signal harmonique que nous mesurons (Fig. 2.16(c)). Dans le cas du faisceau mis en forme, nous avons mesuré ce même signal généré par le profil carré pour chaque énergie. Puis nous avons imagé le faisceau infrarouge en différents plans à proximité du foyer. Cela nous a permis de déterminer l'éclairement (b) ainsi que la largeur du faisceau (a) pour lesquels le signal harmonique était maximal, et ce pour toutes les énergies considérées. La largeur du profil carré reste quant à elle constante qu'elle que soit l'énergie. La figure 2.16 résume ces mesures (les carrés rouges se rapportant au cas du faisceau gaussien et les cercles bleus au profil carré).

Les courbes (b) indiquent ainsi que l'éclairement atteint par le profil carré et une énergie de 9 mJ est de $3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Lorsque l'énergie est de 3 mJ et que le faisceau est gaussien, le maximum de signal est obtenu au même éclairement, alors que le faisceau est focalisé quasiment dans le jet. Le signal (courbes (c)) est multiplié par un facteur 2.4 entre le cas gaussien et le cas du profil carré, rapport sensiblement égal au rapport des volumes de génération. Nous pouvons donc conclure, à partir de cet exemple, à un simple effet de volume : à éclairement donné, l'augmentation du signal entre les deux configurations est simplement due à l'augmentation de la section du faisceau. Tant que l'éclairement reste faible dans le jet de génération, les mesures confirment cette conclusion.

Cependant, il faut remarquer que les mesures des taches infrarouges ont été réalisées dans l'air et une énergie laser très faible. Comme nous l'avons déjà fait remarquer, lorsque l'éclairement laser augmente dans le jet, l'ionisation peut devenir très importante. Dans ce cas, la dispersion due aux électrons libres perturbe la propagation du faisceau. Nous pouvons donc penser que les points des courbes

(b) et (a) du faisceau gaussien donnés pour les énergies élevées sont faux. Par conséquent, il nous a été impossible de conclure expérimentalement sur cette question pour des énergies importantes. De plus, la courbe (c) pour le profil carré montre une saturation du signal à partir de 11 mJ. Cela signifie que l'éclairement de saturation est atteint pour cette énergie, ce qui n'est pas le cas du faisceau gaussien. En effet, il suffit dans ce cas d'éloigner le jet de gaz du foyer pour élargir le profil et diminuer l'éclairement, ce qui est impossible dans le cas du profil carré avec ce jeu de lames, sauf à utiliser une lentille de longueur focale supérieure.

2.2.3.3 Génération à haute énergie

Grâce aux simulations, nous pouvons essayer de prévoir comment utiliser cette technique avec une énergie laser plus importante. Si l'éclairement dans le jet est fixé à $3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, alors une énergie de 50 mJ impose une largeur de faisceau de $450 \mu\text{m}$. Dans le cas d'un faisceau gaussien que l'on focalise dans le jet de gaz, cela impose l'utilisation d'une lentille de 22 m de longueur focale (Une autre possibilité consisterait à utiliser un afocal pour diminuer le diamètre du faisceau avant la lentille. Cependant nous avons vu que la qualité du front d'onde est moins bonne à la périphérie du faisceau. Par conséquent le profil au foyer est dégradé, rendant la génération d'harmoniques moins efficace). L'utilisation des grandes lames définies précédemment permettrait a priori de diviser cette longueur par 2.

Nous avons calculé le nombre de photons générés dans de telles conditions. Nous avons comparé le cas d'un profil carré de $450 \mu\text{m}$ de demi-largeur, obtenu grâce aux grandes lames de phase et à une lentille de 11 mètres de longueur focale, et celui d'un faisceau sans mise en forme, focalisé dans le milieu grâce à une lentille de 22 mètres (voir Fig. 2.17(a)). Le nombre de photons obtenus dans le premier cas est 3 fois supérieur à celui obtenu sans la mise en forme. De plus, le faisceau harmonique généré par le profil carré est moins divergent que dans le cas du profil gaussien.

Nous avons donc pu vérifier, par les simulations, que l'utilisation des lames de phase pour mettre en forme le profil du faisceau laser dans le milieu de génération permettait non seulement un gain de place considérable, mais aussi une légère augmentation du nombre de photons harmoniques produits.

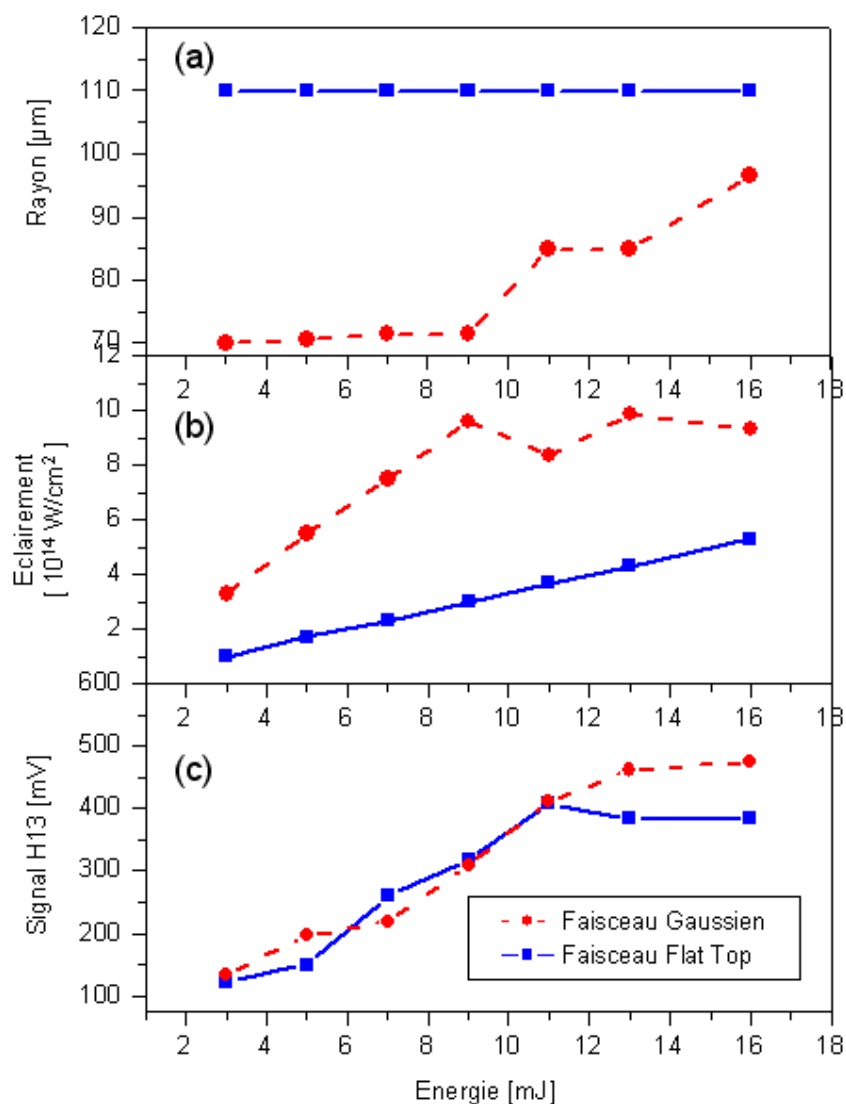


FIG. 2.16: Synthèse des mesures. En (c), évolution du signal harmonique (H13 générée dans l'argon) en fonction de l'énergie pour un faisceau carré (cercles bleus) et gaussien (carrés rouges), avec en (b) l'éclairement et en (a) la largeur du faisceau dans le milieu de génération.

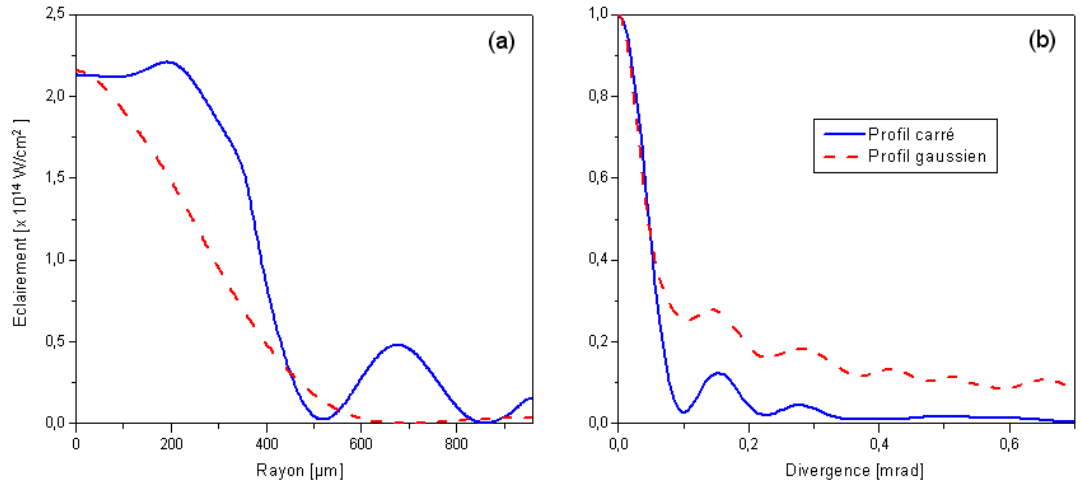


FIG. 2.17: (a) Comparaison des profils infrarouges au centre du jet de gaz. En bleu, profil carré, obtenu par les grandes lames de phase ($f=11\text{m}$). En tiret rouge, profil du faisceau sans mise en forme ($f=22\text{m}$). (b) Divergence de l'harmonique 19 générée dans l'argon. La longueur du jet est de 0.5 cm.

2.3 Conclusion

Nous avons donc démontré la possibilité de modifier le profil dans la région du foyer d'un faisceau laser infrarouge intense grâce à un dispositif très simple permettant la manipulation de la phase spatiale du champ laser. Ainsi, un déphasage proche de π radians de la partie centrale du faisceau gaussien permet de lui donner un profil carré au foyer. Nous avons ensuite utilisé ce profil pour générer des harmoniques d'ordre élevé.

Nous avons étudié les différentes dépendances de la génération d'harmoniques par un tel faisceau. Bien que l'expérience ne nous permette pas de conclure sur un éventuel gain d'efficacité, les simulations numériques indiquent que pour les hautes énergies, le profil carré est plus efficace. Son second avantage est purement pratique : la manipulation de la phase du laser permet de diminuer drastiquement l'encombrement des dispositifs expérimentaux. Bien que la traversée de lames de silice par un faisceau de très haute énergie soit problématique du fait des effets non linéaires, un dispositif similaire en réflexion pourrait aisément être proposé.

Outre cet aspect d'optimisation de la génération d'harmoniques, le profil carré présente d'autres intérêts. Par exemple, lors du doublage de fréquence d'un laser par effet non linéaire dans un cristal, la possibilité de disposer d'un éclairement

uniforme sur toute la section du faisceau permettrait un rendement de conversion plus important et homogène. De même, certains calculs prédisent la possibilité d'utiliser un profil carré afin de générer des impulsions attosecondes uniques (voir [3.3](#)).

Chapitre 3

Conclusion de la première partie et perspectives

3.1 Principaux résultats

Dans un premier temps, nous nous sommes attachés à résoudre le problème suivant : comment générer efficacement des harmoniques d'ordre élevé avec un faisceau incident énergétique tout en limitant la taille du dispositif expérimental ? En effet, lorsque l'éclairement du faisceau infrarouge dans le milieu de génération devient supérieur à l'éclairement de saturation, le milieu est substantiellement ionisé. Plusieurs problèmes surviennent alors. Tout d'abord, le nombre d'atomes neutres dans le milieu devenant très faible, on pourrait s'attendre à ce que les espèces ionisées émettent à leur tour du rayonnement harmonique. Cependant, plusieurs travaux ont montré que ce phénomène n'était que faiblement efficace ([Preston et al., 1996](#); [Wahlstrom et al., 1993](#); [Gibson et al., 2004](#)). De plus, lorsque la densité d'électrons libres devient trop importante, les conditions d'accord de phase s'en trouvent dégradées. La dispersion due aux électrons agit sur le faisceau infrarouge comme une lentille divergente. Cette défocalisation du faisceau peut être bénéfique dans certaines conditions, mais limite l'éclairement que l'on peut atteindre. La solution consiste alors à utiliser des lentilles de longueur focale de plus en plus grande, afin d'obtenir une tache focale plus grande, de telle sorte que l'éclairement atteint soit proche de l'éclairement de saturation. L'inconvénient majeur devient alors l'encombrement de l'ensemble. Outre la distance entre la lentille et le milieu de génération, il est nécessaire de laisser diverger le faisceau infrarouge après focalisation avant de pouvoir le filtrer, sous peine d'endommager les optiques. De ce fait, même en repliant le faisceau infrarouge par réflexion

sur des miroirs après focalisation, les dispositifs expérimentaux mesurent souvent plusieurs mètres de long, pour une énergie de quelques dizaines de milliJoules. Dans le cas du laser LUCA, qui peut délivrer des impulsions d'un peu moins de 100 milliJoules, la longueur focale à utiliser devient incompatible avec les salles d'expériences. Nous avons proposé dans cette première partie une méthode permettant d'élargir le profil du faisceau au foyer. Si la partie externe du faisceau est déphasée par rapport au centre, avant focalisation, il se crée au foyer une figure d'interférence. Dans des conditions particulières que nous avons étudiées, il est possible de modifier le profil gaussien afin d'obtenir un profil carré. Afin de réaliser ce déphasage, nous avons utilisé une petite lame de silice, couplée à un anneau concentrique issu du même matériau. La rotation de la lame centrale sur un axe vertical permet de déphaser la partie centrale du faisceau par rapport à la partie externe. Nous avons ainsi montré en utilisant la partie centrale du faisceau issu d'un laser Hélium-Néon qu'il était possible d'élargir le faisceau d'un facteur 2.5 environ en lui donnant de surcroît un profil carré. Le faisceau présente ce profil sur une distance d'environ 1 mm autour du foyer, ce qui est suffisant pour une utilisation avec un jet de gaz. La qualité du profil obtenu dépend de la qualité du front d'onde du laser au niveau des lames de phase. Il est néanmoins possible de mettre en forme le faisceau du laser LUCA, ce qui nous a permis d'étudier la génération d'harmoniques d'ordre élevé à partir d'un tel faisceau infrarouge.

Dans la gamme d'énergie que nous avons pu explorer, nous avons pu montrer la modulation du signal harmonique en fonction du déphasage introduit par les lames de phase. En fixant la position du foyer au niveau du jet de génération, pour une énergie laser de l'ordre de 10 mJ, le signal harmonique est multiplié par un facteur trois en passant d'un profil gaussien à un profil carré. Cependant, nous avons montré dans le cas d'un faisceau gaussien que lorsque le foyer était décalé par rapport au jet de gaz, il était possible de retrouver le même signal. Bien que les simulations indiquent le contraire, nous n'avons pu observer, dans nos conditions expérimentales particulières, aucune augmentation de l'efficacité de génération. L'augmentation du signal observée est simplement liée à l'augmentation du volume de génération du fait de l'élargissement du profil radial du faisceau. De plus, le jeu de lames de phase que nous avons choisi ne permet pas d'explorer des domaines d'énergie supérieurs à 10 mJ, car dans ce cas l'éclairement du faisceau carré est supérieur à l'éclairement de saturation.

3.2 Génération d'harmoniques à haute énergie

Parallèlement à ces études, une solution plus classique a été étudiée (voir Fig. 1.7). Elle privilégie la focalisation par de grandes longueurs focales (jusqu'à 10 mètres). Afin de réduire l'encombrement, le faisceau infrarouge est replié plusieurs fois sur lui-même par des réflexions sur des miroirs après focalisation. La génération s'effectue dans une cellule, dont on peut faire varier la taille entre 0 et 15 cm. Elle est suivie de deux lames de silice sous incidence rasante permettant de séparer le faisceau infrarouge du rayonnement harmonique, puis d'un monochromateur constitué d'un miroir torique suivi d'un réseau plan. L'ensemble permet donc de travailler soit avec l'ensemble des harmoniques, ce qui permet éventuellement de profiter des caractéristiques temporelles de l'émission, soit avec un ordre harmonique donné en travaillant sur l'ordre 1 du réseau. A ce jour, le système a été testé avec des longueurs focales allant jusqu'à 7.5 m et des énergies laser de 35 mJ. Il a ainsi été possible d'atteindre des énergies de l'ordre du microJoule à 32 nm.

Afin de rendre cette source pleinement utilisable pour les applications, il est prévu d'installer une parabole hors-axe afin de focaliser le rayonnement harmonique sur une tache de 10 μm de diamètre, ainsi qu'une mesure du front d'onde XUV et une caractérisation temporelle des impulsions harmoniques. Enfin, une implantation du dispositif sur le laser UHI10 du SPAM est à l'étude. Ce laser délivre des impulsions de 60 fs avec une puissance crête de 10 TW.

Les premières applications de cette nouvelle source VUV ont déjà commencé, parallèlement à son développement. Il s'agit d'expériences de diffraction cohérente d'objets nanométriques, applications qui exigent un flux de photons important (Chapman et al., 2006). Un objet nanométrique placé sur le trajet du faisceau à proximité du foyer diffracte l'onde harmonique. La figure de diffraction est recueillie sur une caméra CCD, puis un algorithme permet de l'inverser afin de remonter à l'objet initial. Du fait des propriétés de la génération d'harmoniques, il est possible d'envisager des images de type pompe-sonde, par exemple dans le domaine de la biologie. De plus, en travaillant non pas avec un ordre harmonique donné mais avec l'ensemble du spectre, il serait possible de profiter du caractère ultrabref de l'émission. Cependant, les algorithmes de reconstruction supposent que l'onde reçue par le détecteur soit une onde plane. De ce fait, il est nécessaire d'obtenir une très bonne focalisation du rayonnement harmonique. D'où l'importance de disposer d'un dispositif de génération d'harmoniques efficace.

3.3 Génération d’impulsions attosecondes uniques par un faisceau carré

L’une des motivations de l’étude de la génération d’harmonique par un profil carré était l’aspect temporel de l’émission. Lors de cette étude, nous n’avons pas la possibilité d’effectuer de mesure de phase harmonique. Nous n’avons pas pu vérifier l’effet du profil carré sur la synchronisation temporelle de l’émission, ni étudier les effets de moyenne spatiale évoqués au paragraphe 1.2.1.1. Dans le cadre des études sur la génération d’harmoniques dans les molécules que nous présenterons dans les chapitres suivant nous avons mis en place un dispositif expérimental permettant ce type de mesure. Cependant, par manque de temps nous n’avons pu installer les lames de phase sur cette expérience. Il serait cependant intéressant de procéder à cette mesure dans l’avenir.

Nous avons de plus évoqué la possibilité de générer des impulsions attosecondes uniques à partir d’un profil carré. Nous avons lors de nos études mesuré le spectre du rayonnement pour différentes conditions de générations. Nous n’avons cependant pas observé de différences entre les spectres mesurés dans le cas de la génération par un profil gaussien ou carré. Cela est certainement lié à un manque d’énergie laser. En effet, il est nécessaire de pouvoir ioniser le milieu rapidement afin d’observer un élargissement spectral. Dans notre cas, l’éclairement maximal du profil carré était de $5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ environ, valeur trop proche de l’éclairement de saturation. (Boyko et al., 2005c) ont étudié l’effet sur le spectre harmonique de l’utilisation d’un profil carré. Ils ont utilisé un miroir déformable afin de modifier la distribution spatiale d’éclairement au foyer. Lors de l’utilisation d’un profil gaussien (figure (a)), ils observent un spectre constitué d’harmoniques discrètes. Lorsqu’ils modifient le profil afin d’obtenir une distribution d’éclairement carrée, le spectre devient un continuum (l’éclairement est de $7 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$, bien supérieur à ce que nous pouvions atteindre). Bien qu’en l’absence de mesure de la phase spectrale il ne soit pas possible de conclure quant à sa durée, ce spectre est compatible avec la génération d’une impulsion unique. Ils attribuent cet effet à la création d’une porte temporelle liée à un accord de phase très transitoire lié à l’ionisation du milieu. D’autres études seraient nécessaires, utilisant les lames de phase ou tout autre dispositif, afin de définitivement attribuer cet élargissement au profil du faisceau et de pouvoir conclure sur la présence ou non d’impulsions attosecondes uniques.

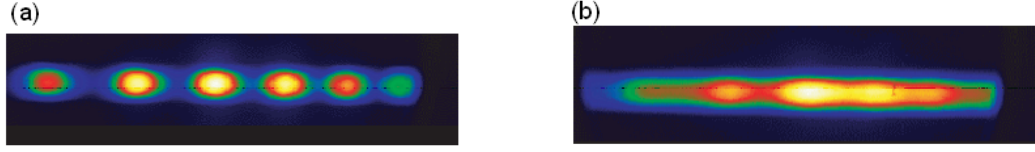


FIG. 3.1: Spectres (ordres 21 à 31) générés dans l'argon par (a) un faisceau gaussien et (b) un faisceau carré. D'après [Boyko et al. \(2005c\)](#).

Bien que de nombreuses méthodes aient été proposées afin de générer des impulsions attosecondes uniques, peu de laboratoires sont capables de les mettre en oeuvre, surtout car elles sont très contraignantes sur les caractéristiques du système laser. Cependant, cela ne signifie pas que l'étude de phénomènes ultrarapides se déroulant à l'échelle attoseconde nous soit toujours interdite. Nous verrons au chapitre 4 que l'étude de la génération d'harmoniques nous permet d'étudier les dynamiques électroniques attosecondes des atomes et des molécules en champ fort.

PARTIE II

Chapitre 4

Théorie de la génération d'harmoniques à l'échelle atomique et moléculaire

Ces dernières années, la génération d'harmoniques dans les gaz rares a été très largement étudiée expérimentalement et théoriquement. Une autre voie d'étude a été la recherche de l'optimisation du nombre de photons UV générés (voir chapitre 1) afin de permettre l'utilisation des harmoniques comme source de rayonnement. Dans cette optique, différents travaux ont cherché à comparer les efficacités de différents gaz, tant atomiques que moléculaires ([Liang et al., 1994](#); [Lynga et al., 1996](#)). Cependant, il s'est avéré que les gaz atomiques étaient plus prometteurs que les gaz moléculaires. De ce fait, la plupart des travaux postérieurs portèrent sur l'étude des gaz rares. Peu après les années 2000 cependant, l'étude de la génération d'harmoniques dans les gaz moléculaires a connu un regain de popularité. De nouvelles prédictions théoriques, couplées à de nouveaux résultats expérimentaux, ont montré que certaines propriétés des molécules sources étaient encodées dans le rayonnement harmonique. Cette remarque, couplée à ses remarquables propriétés temporelles, fait de cette source un outil extraordinaire pour l'étude des dynamiques moléculaires résolues à la fois temporellement et spatialement.

Bien que la découverte du phénomène de la génération d'harmoniques date de la fin des années 1980 ([McPherson et al., 1987](#); [Ferray et al., 1988](#)), il a fallu attendre 1993 pour qu'un modèle théorique explique ce comportement ([Corkum, 1993](#); [Schafer et al., 1993](#)). Ce modèle, semi-classique, a été justifié un an plus tard par un autre modèle, entièrement quantique, proposé par [Lewenstein et al. \(1994\)](#). Dans un premier temps, nous reviendrons brièvement sur ces deux modèles en

montrant comment ils permettent de prévoir les caractéristiques du rayonnement harmonique généré par un atome unique. Nous redémontrerons ensuite comment la caractérisation de la phase spectrale du rayonnement permet de remonter à la dynamique électronique lors du phénomène de génération d'harmoniques (Mairesse et al., 2003). Puis dans une seconde partie, nous montrerons l'intérêt de l'étude de la génération d'harmoniques dans les molécules.

4.1 La génération d'harmonique à l'échelle atomique et moléculaire

4.1.1 Le modèle en trois étapes

Comme nous l'avons précisé précédemment, la génération d'harmoniques d'ordres élevés, phénomène hautement non linéaire, ne peut s'expliquer par la théorie des perturbations. Un modèle semi-classique a été proposé par Corkum et al. en 1993 (Corkum, 1993; Schafer et al., 1993). Il découpe le processus de génération en trois étapes successives, lesquelles sont résumées sur la figure 4.1. La première image représente le potentiel de l'atome lorsque le champ laser est nul (I_p représentant l'énergie potentielle d'ionisation). Lorsque le champ laser devient maximal, il est suffisamment important pour abaisser la barrière de potentiel, de telle sorte qu'une partie du paquet d'onde électronique va pouvoir la traverser par effet tunnel. Étant donné les éclaircissements atteints, on considère que le paquet d'onde ainsi créé dans le continuum ne subit plus l'influence du potentiel coulombien de l'atome ou de la molécule parent. Il évolue donc dans un potentiel linéaire, et va être accéléré. Lorsque le champ laser change de signe, l'électron est décéléré, puis, selon l'instant auquel il a été ionisé, il peut changer de sens et être à nouveau accéléré en se rapprochant du noyau. Dans ce cas, il peut soit éjecter un autre électron du noyau (ionisation séquentielle) soit se recombiner avec l'ion en libérant l'énergie cinétique accumulée lors de sa propagation en émettant un photon harmonique d'énergie $E_q = I_p + E_c$, E_q étant l'énergie de l'harmonique d'ordre q , I_p le potentiel d'ionisation de l'atome ou de la molécule considéré et E_c l'énergie cinétique accumulée lors de la propagation. Par ce calcul il est possible de reproduire, au moins qualitativement, les variations des propriétés du rayonnement harmonique en fonction des paramètres de la génération. Il donne ainsi la position de la coupure du spectre ou l'évolution de la phase relative des harmoniques en fonction de l'éclairement de génération.

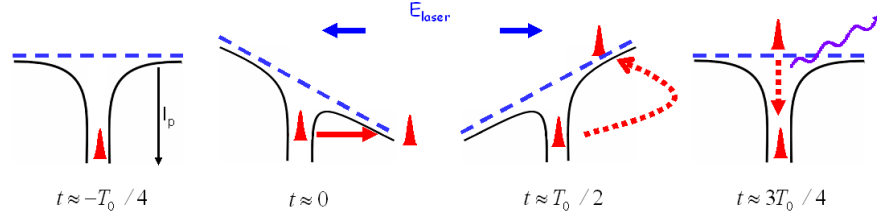


FIG. 4.1: Modèle en trois étapes de la génération d'harmoniques d'ordres élevés.

Ce processus se répète tous les demi-cycles optiques dans le cas d'un laser multicycle infrarouge. De ce fait, l'émission harmonique se présente sous la forme de trains d'impulsions séparées d'une demi-période optique. Il est cependant possible de manipuler le champ laser afin de confiner la génération à un unique demi-cycle et générer des impulsions attosecondes uniques.

Ce modèle est appelé modèle semi-classique car il invoque des arguments de mécanique quantique (ionisation tunnel) tout en traitant le paquet d'onde électronique comme une particule classique lors de l'étape d'accélération dans le champ laser. Le modèle proposé par Lewenstein en 1994 permet d'effectuer quantiquement le calcul de la génération d'harmoniques tout en justifiant par ailleurs les hypothèses du modèle en trois étapes (Lewenstein et al., 1994).

4.1.2 Le modèle quantique de Lewenstein

4.1.2.1 Cas de la génération par les atomes

Le modèle de Lewenstein repose sur l'hypothèse de l'approximation du champ fort (SFA pour Strong Field Approximation (Lewenstein et al., 1994)) dans le cadre de l'approximation d'un seul électron actif. Dans ce cadre, on suppose que seul l'état fondamental de la structure atomique intervient, les niveaux excités n'entrent pas en ligne de compte. De plus, on considère que le champ laser est suffisamment intense pour que l'électron dans le continuum ne soit plus affecté par le potentiel coulombien de l'atome ionisé : il est libre dans le continuum. Cependant, l'éclairement est suffisamment inférieur à l'éclairement de saturation de sorte que le taux d'ionisation reste faible. Dans ce cas, la déplétion du fondamental peut être négligée.

Keldysh (Keldysh, 1965) a proposé un paramètre, γ , afin de vérifier si les conditions expérimentales permettent effectivement de se placer dans le cadre de l'ap-

proximation du champ fort. γ est défini comme le rapport entre le temps que mettrait un électron pour franchir la barrière de potentiel par effet tunnel et la période T_0 du champ fondamental. On a donc

$$\gamma = \omega_0 \sqrt{\frac{I_p}{2E^2}} = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} \quad (4.1)$$

où $U_p = E^2/4\omega_0^2$ est le potentiel pondéromoteur. Si $\gamma \ll 1$, alors on peut considérer que l'on est dans le régime d'ionisation tunnel : le champ est suffisamment important pour abaisser fortement la barrière de potentiel et la probabilité d'ionisation tunnel est importante. Si par contre $\gamma \gg 1$, on est dans le régime multiphotonique. Dans le cadre de la génération d'harmoniques, l'éclairement est de l'ordre de 10^{14} W/cm^2 . De ce fait, $\gamma \lesssim 1$. On peut ainsi considérer que l'on est dans le régime tunnel, et dans ce cas il est légitime d'appliquer les hypothèses de SFA.

Dans le cadre de nos approximations, la composante suivant \hat{x} du dipôle harmonique s'écrit :

$$\delta(t) = -i \int_0^t dt' \int d\mathbf{p} d\mathbf{p}_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t)}^* e^{iS(\mathbf{p},t',t)} \mathbf{E}(t') \mathbf{d}_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t')} \quad (4.2)$$

où \mathbf{p} est le moment canonique, \mathbf{A} le potentiel vecteur, \mathbf{d} l'élément de transition dipolaire électrique entre le niveau fondamental et un niveau du continuum et

$$S(\mathbf{p}, t', t) = - \int_{t'}^t \left(\frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t''))^2}{2} + I_p \right) dt'' \quad (4.3)$$

Il est possible d'interpréter la formule (4.2) en se basant sur le modèle en trois étapes. A l'instant t' , une partie du paquet d'ondes électroniques passe de l'état fondamental au continuum par transition dipolaire électrique. L'amplitude de la probabilité de parvenir à un état du continuum de moment canonique \mathbf{p} est donnée par le terme $\mathbf{E}(t') \mathbf{d}_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t')}$. Dans le continuum, le paquet d'ondes se propage dans le champ laser et accumule une phase égale à l'action classique $S(\mathbf{p}, t', t)$. Enfin, à l'instant t , il possède une impulsion $\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)$ et il se recombine avec l'état fondamental avec une amplitude de probabilité $\mathbf{d}_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t)}^*$. Le dipôle harmonique est alors la somme sur l'ensemble des contributions des paquets d'électrons.

Le spectre harmonique est proportionnel au module au carré de la transformée de Fourier du dipôle harmonique $\delta(\omega_q) = \int \delta(t) e^{i\omega_q t} dt$. On peut donc écrire :

$$\delta(\omega_q) = \int dt \int_0^t dt' \int d\mathbf{p} a(t, t', \mathbf{p}) e^{i(\omega_q t + S(\mathbf{p}, t', t))} \quad (4.4)$$

4.1.2.2 Cas de la génération par les molécules

Les premiers travaux sur l'ionisation des molécules ont montré que, dans l'ensemble, leur taux d'ionisation était très proche de celui des atomes ayant le même potentiel d'ionisation ([Chin et al., 1992](#); [Walsh et al., 1993](#)). Cependant, un certain nombre d'exception ont été trouvées. Citons par exemple la suppression de l'ionisation pour O_2 , comparativement au xénon ([Talebpour et al., 1996](#); [Guo et al., 1998](#)) qui pourtant possède le même potentiel d'ionisation. Le modèle ADK (pour Ammonosov, Delone et Krainov ([Ammonosov et al., 1986](#))), utilisé pour le calcul des taux d'ionisation tunnel dans les atomes dans le cadre de la génération d'harmonique, doit donc être modifié pour tenir compte des structures moléculaires plus complexes et expliquer ces différences.

Une modification du calcul par ADK a été proposée par [Tong et al. \(2002\)](#). En effet, dans le cas des molécules, la symétrie sphérique du système disparaît. Il est alors nécessaire de modifier le calcul en utilisant non plus le moment angulaire des électrons mais sa projection sur l'axe internucléaire. [Cornaggia and Hering \(2000\)](#) avait proposé quelques années auparavant la même approche, dans un cadre un peu plus général.

Après l'étape d'ionisation tunnel, le modèle de Lewenstein fait l'hypothèse que le paquet d'ondes électroniques dans le continuum est libre de toute influence du potentiel du noyau. De ce fait, la description de l'étape d'accélération du paquet d'ondes reste correcte.

4.1.3 Dynamique électronique

4.1.3.1 Approche classique

Comme nous l'avons précisé au paragraphe [4.1.1](#), le modèle semi-classique permet de retrouver qualitativement la plupart des caractéristiques de la génération d'harmoniques. Aussi dans un premier temps nous allons étudier brièvement la dynamique des électrons lors du processus de génération en nous plaçant dans ce cadre. L'électron dans le continuum n'est alors soumis qu'à l'influence du champ électrique du laser. De ce fait, les équations du Principe Fondamental de la Dynamique permettent de décrire son mouvement. On suppose de plus que la barrière de potentiel est infiniment mince (ce qui implique que l'électron est placé dans le continuum à l'origine) et que la vitesse de l'électron à l'instant de l'ionisation est nulle (il a perdu toute son énergie cinétique pour passer la barrière par effet

tunnel). Si $x(t)$ représente la position d'un électron en fonction du temps dans le continuum, on a donc :

$$\begin{cases} \frac{d^2x}{dt^2}(t) & \propto -E_0 \cos(\omega_0 t) \\ \frac{dx}{dt}(t') & = 0 \\ x(t') & = 0 \end{cases} \quad (4.5)$$

où t' représente l'instant d'ionisation. La résolution de l'équation (4.5) nous donne pour $x(t)$ l'expression suivante :

$$x(t) = \frac{E_0}{\omega_0^2} (\cos(\omega_0 t) - \cos(\omega_0 t')) + \frac{E_0}{\omega_0} \sin(\omega_0 t') (t - t') \quad (4.6)$$

En fonction de leur instant d'ionisation, les électrons peuvent suivre différentes trajectoires dans le continuum : un électron ionisé au moins 500 as après un maximum du champ laser ne reviendra pas vers le noyau mais s'en éloignera en oscillant. Au contraire, s'il est ionisé entre un maximum du champ et le délai précédent, il pourra se recombiner avec l'ion. Il aura alors lors de son excursion gagné une énergie cinétique E_c . La figure 4.2 montre que si l'on considère uniquement les trajectoires qui croisent le noyau en moins d'une période, l'énergie cinétique maximale que peut gagner un électron est de $E_{c,max} \approx 3.2U_p$. On retrouve ainsi la loi de la coupure. Lors de la recombinaison, l'énergie cinétique sera restituée sous forme d'un photon harmonique d'énergie $E_q = E_c + I_p$, I_p étant le potentiel d'ionisation du gaz de génération. Dans le cas de la figure 4.2, la coupure se situe à l'ordre 21 (les calculs ont été effectués pour un éclairement de $1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ dans l'argon). La figure 4.2(b) montre que pour émettre des photons correspondant à un ordre harmonique q , un électron peut suivre deux trajectoires différentes donnant la même énergie cinétique finale, représentées ici en rouge et en bleu (Kazamias and Balcou, 2004). Ces deux trajectoires sont traditionnellement regroupées en deux groupes, les trajectoires courtes et les trajectoires longues.

Les harmoniques émises par chacune des trajectoires ont des propriétés sensiblement différentes. Tout d'abord, la figure (b) met en évidence le fait qu'au sein d'une même famille, toutes les harmoniques ne sont pas émises en même temps. En effet, si l'on ne considère par exemple que les trajectoires courtes (les courbes bleues), les temps d'émission de chaque harmonique sont décalés les uns par rapport aux autres d'une centaine d'attosecondes environ pour l'éclairement de génération que nous avons utilisé ici. Cette dérive de fréquence linéaire joue un rôle primordial lorsque l'on s'intéresse à l'optimisation de la durée des impulsions attosecondes (Mairesse et al., 2003). Elle dépend de plus de l'éclairement de façon différente selon la trajectoire observée (Corsi et al., 2006). Enfin, les émissions

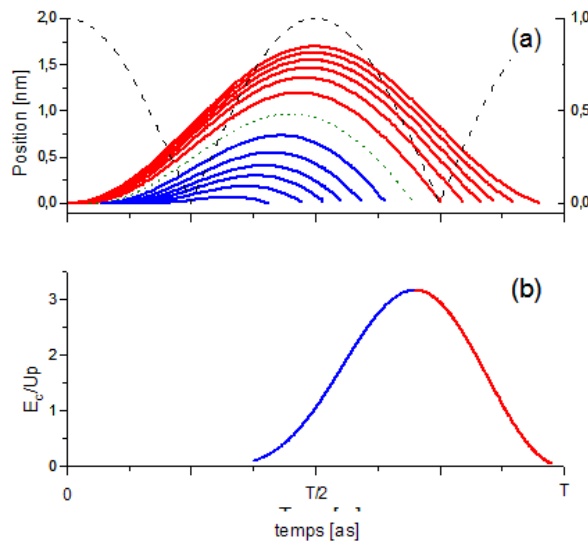


FIG. 4.2: (a) Trajectoires classiques des électrons en fonction du continuum. La courbe en pointillée représente l'évolution de la valeur absolue du champ infrarouge en fonction du temps. (b) Énergie cinétique des électrons (en unité de U_p) en fonction de l'instant de recombinaison. Dans les deux cas, les courbes bleues (noires) représentent les trajectoires courtes, les courbes rouges (grises) les trajectoires longues. Les calculs ont été effectués pour un éclairement de $1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ dans l'argon.

des deux familles de trajectoires ont des caractéristiques spatiales et spectrales différentes (Salieres et al., 1995; Salières et al., 2001; Merdji et al., 2006).

4.1.3.2 Approche quantique

Toutes ces observations découlent du calcul des trajectoires classiques. Le modèle de Lewenstein permet cependant de retrouver de façon plus rigoureuse ces résultats par un calcul quantique. Salières et al. (2001) ont donné une interprétation de la formule (4.4) en s'appuyant sur la théorie des intégrales de Feynman. L'amplitude du dipôle est alors vue comme la somme cohérente des contributions de tous les chemins quantiques reliant l'état initial et l'état final. Bien que le calcul du dipôle fasse intervenir une somme sur une infinité de chemins quantiques, dans l'approximation du champ fort l'action classique $S(\mathbf{p}, t', t)$ varie en général très rapidement le long d'une trajectoire quantique. Le poids de l'ensemble de ces chemins sera alors négligeable, et les trajectoires dont la phase est stationnaire vont dominer l'intégrale.

La condition de stationnarité de la phase, $\delta(S[\mathbf{p}, t', t] + \omega_q t) = 0$ permet de simplifier le calcul en réduisant le nombre de trajectoires à considérer. Cette condition permet de retrouver les conditions initiales imposées lors de la résolution du modèle semi-classique, ainsi que les deux principales familles de trajectoires (Lewenstein et al., 1995; Antoine et al., 1996a). La figure 4.3 représente les temps d'ionisation et d'émission en fonction de l'ordre harmonique obtenus par les calculs quantiques et classiques. Les temps d'émission des familles de trajectoires sont remarquablement similaires entre les deux calculs. La principale différence tient en l'apparition de la coupure lors du calcul quantique. Classiquement, l'émission d'harmoniques d'énergie supérieure à $I_p + 3.2U_p$ est interdite. Le modèle de Lewenstein montre lui que lorsque l'ordre harmonique augmente, les deux trajectoires se rapprochent l'une de l'autre pour devenir une trajectoire unique dans la coupure, zone dans laquelle les énergies émises sont supérieures à $I_p + 3.2U_p$. Concrètement, cela signifie que les différents ordres harmoniques ne sont pas émis en phase dans le plateau mais que l'émission de toutes les harmoniques de la coupure a lieu à un même instant (environ 1800 as après le maximum du champ infrarouge dans l'exemple présenté ici) (Mairesse et al., 2004).

Il est remarquable qu'un modèle aussi simplifié que le modèle en trois étapes permette de retrouver qualitativement la plupart des propriétés de la génération d'harmoniques d'ordres élevés prédites par le calcul quantique. De plus, il a été possible grâce aux travaux de nombreux groupes de recherche de vérifier expéri-

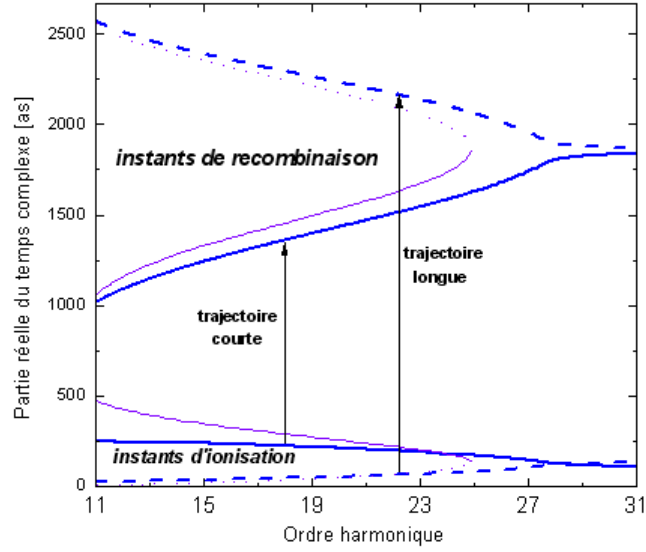


FIG. 4.3: Partie réelle des instants d'ionisation et d'émission en fonction de l'ordre harmonique. Les trajectoires longues sont en pointillés, les courtes en traits continus. Le résultat du calcul classique est présenté en traits fins. (conditions du calcul : éclairement de $1.2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ dans l'argon) (Mairesse, 2005)

mentalement l'existence des deux familles de trajectoires ainsi que les différentes dépendances de leurs propriétés (Lynga et al., 1999; Lee et al., 2001; Merdji et al., 2006). L'accord entre la théorie et les résultats expérimentaux est lui aussi particulièrement bon, dans le cas de la génération d'harmoniques dans les gaz rares.

4.2 Génération d'harmoniques dans les molécules

Comme nous l'avons déjà vu précédemment, la génération d'harmoniques d'ordres élevés est un phénomène qui a été largement étudié, tant du point de vue fondamental qu'en tant que source de rayonnement UVX. Il est en effet possible de jouer sur différents paramètres afin d'augmenter l'efficacité de génération (cf 1^{ère} partie), ou d'en améliorer les caractéristiques temporelles (Mairesse et al., 2003; Lopez-Martens et al., 2005). De plus, l'étude du rayonnement harmonique est un formidable outil pour comprendre et étudier la dynamique des atomes soumis à un champ laser intense (Mairesse et al., 2003).

Il paraît intéressant de tirer parti de ces propriétés pour étudier des systèmes ou des effets plus complexes. Par des expériences de type pompe-sonde il est pos-

sible, grâce à la brièveté des impulsions harmoniques, de mesurer des dynamiques femtosecondes, voire même sub femtosecondes. Dans ce schéma, l'impulsion UV déclenche un processus atomique ou moléculaire qui est sondé par une seconde impulsion laser après un délai variable (voir par exemple [Kienberger et al. \(2004\)](#)). Une autre technique consiste non plus à sonder le milieu par une impulsion lumineuse mais par les paquets d'ondes électroniques générés pendant l'interaction avec une première impulsion laser. Certaines informations concernant le système sont en effet encodées dans le produit de la recollision de ces paquets d'ondes. Au lieu de retarder une impulsion par rapport à l'autre, comme c'est le cas lors des mesures de type pompe-sonde, il est possible de faire varier l'excursion du paquet d'ondes électroniques dans le continuum en changeant la longueur d'onde du laser excitateur ([Niikura et al., 2003](#); [Alnaser et al., 2003](#)). Après avoir présenté une application de ce type, nous verrons comment la structure des molécules peut modifier les propriétés spectrales du rayonnement. Enfin, nous montrerons comment cela nous permet de remonter aux caractéristiques des molécules émettrices.

4.2.1 Les harmoniques comme sonde de la structure des molécules

Dans le cas d'une molécule, [Lein \(2005\)](#) a montré que l'étude des propriétés des harmoniques permettait de mesurer des dynamiques de vibrations ultrarapides. Une impulsion laser intense, lors de l'ionisation tunnel du paquet d'ondes électroniques, génère aussi un paquet d'ondes vibrationnelles. Les dynamiques de l'ion et du paquet d'ondes électroniques dans le continuum sont donc corrélées. Le signal harmonique est de ce fait proportionnel au carré du module d'une fonction d'autocorrélation, définie comme la superposition des fonctions d'onde du noyau entre les instants d'ionisation et de recollision. L'étape de recombinaison constitue donc une sonde de l'état de l'ion parent. Or les instants de recombinaison des différents ordres harmoniques s'étalent sur une durée de plusieurs centaines d'attosecondes (alors que les instants d'ionisation correspondants sont espacés de moins de 100 as (paragraphe 4.1.3)). Lorsqu'il est possible d'associer à chaque ordre harmonique un temps d'émission donné (c'est à dire par exemple si seules les contributions dues aux trajectoires courtes sont sélectionnées), mesurer le rayonnement harmonique est équivalent à sonder l'état de l'ion moléculaire à différents instants après l'interaction initiale. La figure 4.4 schématise le principe d'une expérience type. Trois trajectoires électroniques, correspondant à trois ordres harmoniques différents, sont représentées. Du fait de la dynamique électronique dans le champ

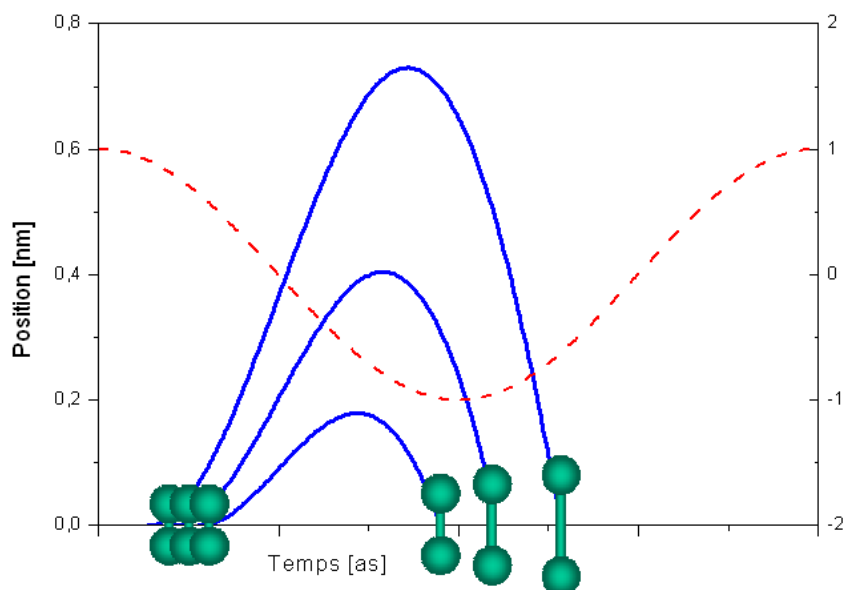


FIG. 4.4: Schéma de principe d'une expérience de mesure de dynamique moléculaire avec les harmoniques. En rouge, le champ infrarouge.

infrarouge, plus les électrons sont énergétiques, plus l'état de l'ion aura eu le temps d'évoluer entre l'instant initial et la sonde (Niikura et al., 2003).

Utilisant cette idée, Baker et al. (2006) ont comparé la génération d'harmoniques dans deux molécules isotopes légères, H_2 et D_2 . Ces deux molécules étant des isotopes, leurs états électroniques sont similaires, et les différences observées dans les spectres harmoniques ne sont dues qu'à une différence de dynamique nucléaire. Mesurer l'évolution avec l'ordre harmonique du rapport entre les signaux mesurés dans chaque gaz permet ainsi d'obtenir des informations sur les différences de dynamique des deux espèces. Le mécanisme de la génération d'harmoniques permet d'obtenir une résolution temporelle de 100 as, sur une plage de 1 fs environ. Utiliser un laser de longueur d'onde différente permettrait de faire varier ces deux dernières quantités.

4.2.2 Interférences lors du processus de recombinaison

La plupart des molécules présentent des dynamiques de vibrations beaucoup plus lentes, de telle sorte que le mouvement des noyaux paraît figé à l'échelle de la génération d'harmoniques. Le rayonnement harmonique résulte de la recombinaison cohérente d'un paquet d'onde électronique issu de l'orbitale HOMO d'une molé-

cule sur cette même orbitale. De ce fait, les propriétés de l'orbitale sont encodées dans le rayonnement UV. Prenons l'exemple de la génération d'harmoniques dans une molécule linéaire diatomique pour laquelle les deux atomes sont identiques.

Intéressons nous dans ce cas au calcul du dipôle harmonique $d(t) = \langle \psi(t) | r | \psi(t) \rangle$. Dans l'approximation du seul électron actif, on peut l'écrire, en considérant que l'état électronique $|\psi(t)\rangle$ est la superposition d'une partie $|\psi_0\rangle$ dans l'état fondamental et d'une partie $|\psi_c\rangle$ dans le continuum :

$$\mathbf{d}(t) = \langle \psi_0(t) | \mathbf{r} | \psi_0(t) \rangle + \langle \psi_0(t) | \mathbf{r} | \psi_c(t) \rangle + \langle \psi_c(t) | \mathbf{r} | \psi_0(t) \rangle + \langle \psi_c(t) | \mathbf{r} | \psi_c(t) \rangle \quad (4.7)$$

Dans cette équation, le premier terme représente le dipôle permanent de la molécule, le deuxième est le terme de recombinaison de l'électron avec l'ion parent, le troisième l'ionisation d'un électron et le dernier les transitions continuum-continuum. Pour la suite, seul le deuxième terme nous intéressera, car il est le responsable de la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Si on se place de plus dans l'approximation du champ fort, on peut alors considérer que l'électron ionisé n'est soumis lors de son excursion dans le continuum qu'à la seule influence du champ laser (Lewenstein et al., 1994). Dans ce cas, on peut écrire les états du continuum comme des ondes planes $e^{-i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}-\omega(\mathbf{k})t)}$, dont la pulsation de De Broglie correspond à l'énergie cinétique d'un électron libre d'impulsion \mathbf{k} . (Nous verrons par la suite que cette approximation est fortement discutable dans le cadre de la génération d'harmoniques. Il est en effet assez audacieux de prétendre que le paquet d'onde électronique ne perçoit le potentiel moléculaire qu'à l'instant exact de la recombinaison.) On a alors

$$\mathbf{d}(\omega) = \int dt \mathbf{d}(t) e^{i\omega t} = a(k(\omega)) \langle \psi_0 | \mathbf{r} | e^{i\mathbf{k}(\omega)\cdot\mathbf{r}} \rangle \quad (4.8)$$

Le spectre harmonique est proportionnel à l'accélération du dipôle $\mathbf{d}(\omega)$, soit encore, si l'on considère que le rayonnement harmonique est polarisé suivant la direction de polarisation du laser incident \hat{e} (Burnett et al., 1992),

$$A(\omega) \propto \ddot{d}(\omega) \quad (4.9)$$

$$A(\omega) \propto \omega^4 a(\mathbf{k}(\omega)) \int \langle \psi_0 | \hat{\mathbf{e}} \cdot [\nabla V + \mathbf{E}(t)] | e^{i\mathbf{k}(\omega)\cdot\mathbf{r}-i\omega(\mathbf{k})t} \rangle \quad (4.10)$$

où V est le potentiel coulombien de la molécule. Afin de nous donner une idée du résultat de ces calculs, nous pouvons simplifier encore les molécules que nous examinerons. Nous allons considérer que la contribution du potentiel coulombien

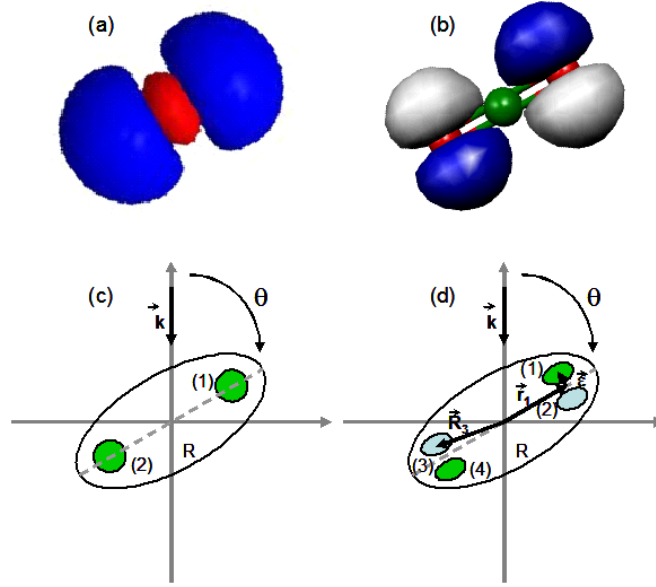


FIG. 4.5: Orbitales HOMO de (a) N_2 et (b) CO_2 . Schéma de l'orbitale HOMO simplifiée (c) d'une molécule de symétrie + (N_2 par exemple) et (d) d'une molécule de symétrie - (CO_2 par exemple).

n'est importante qu'au voisinage de chaque noyau dans une région Ω_j dont le rayon est faible devant la distance internucléaire. De plus la fonction d'onde de l'état fondamental ψ_0 est constante à l'intérieur de chacune des zones. Dans ce cas, le terme d'amplitude complexe du signal harmonique devient dans la direction de polarisation du laser de génération :

$$A(\omega) \propto \sum_j \psi_0(\mathbf{r}_j) e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j} \int_{\Omega_j} V(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (4.11)$$

Intéressons nous dans un premier temps aux molécules d'azote. L'orbitale moléculaire occupée de plus haute énergie (HOMO) de N_2 possède la symétrie σ^+ . Il s'agit d'une orbitale symétrique, que l'on peut schématiser dans le cadre de nos approximations comme deux zones identiques centrées sur chacun des noyaux (Fig. 4.5(a)) Dans ce cas, le spectre devient :

$$A(\omega) \propto (\psi_0(\mathbf{r}_1) e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_1} V(\mathbf{r}_1) \Omega_1) + (\psi_0(\mathbf{r}_2) e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_2} V(\mathbf{r}_2) \Omega_2) \quad (4.12)$$

D'après nos hypothèses, $\psi_0(\mathbf{r}_1) = \psi_0(\mathbf{r}_2)$. L'azote étant une molécule diatomique symétrique, on a $V(\mathbf{r}_1) = V(\mathbf{r}_2)$ et $\Omega_1 = \Omega_2$. De ce fait,

$$A(\omega) \propto e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_1} + e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_2} \quad (4.13)$$

L'équation (4.13) montre que pour une orientation de la molécule donnée, le signal va être minimal lorsque les électrons auront un vecteur d'onde qui vérifie $\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2) = \pi(2m + 1)$ avec m un entier et maximal lorsqu'ils vérifieront $\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2) = 2m\pi$. D'après la figure 4.5(a), $\mathbf{k} \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2) = \mathbf{k} \cdot \mathbf{R} = \frac{2\pi}{\lambda_e} R \cos(\theta)$. Dans le cas d'une molécule possédant la symétrie +, il se produit un phénomène d'interférences destructives lors de la recombinaison lorsque la longueur d'onde de De Broglie de l'électron λ_e vérifie

$$R \cos \theta = (2m + 1)\lambda_e/2 \quad (4.14)$$

et d'interférences constructives pour λ_e telle que :

$$R \cos \theta = m\lambda_e \quad (4.15)$$

La molécule de CO_2 possède quant à elle la symétrie -, que l'on peut schématiser dans le cadre de nos approximations par la figure 4.5(b). L'équation (4.11) devient alors :

$$A(\omega) \propto (\psi_0(\mathbf{R}_1)e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_1}V(\mathbf{R}_1)\Omega_1) + (\psi_0(\mathbf{R}_2)e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_2}V(\mathbf{R}_2)\Omega_2) + (\psi_0(\mathbf{R}_3)e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_3}V(\mathbf{R}_3)\Omega_3) + (\psi_0(\mathbf{R}_4)e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_4}V(\mathbf{R}_4)\Omega_4) \quad (4.16)$$

Si l'on pose

$$\begin{cases} \mathbf{R}_1 = \mathbf{r}_1 + \epsilon \\ \mathbf{R}_2 = \mathbf{r}_1 - \epsilon \\ \mathbf{R}_3 = \mathbf{r}_2 + \epsilon \\ \mathbf{R}_4 = \mathbf{r}_2 - \epsilon \end{cases} \quad (4.17)$$

on obtient alors les interférences destructives et constructives pour les conditions suivantes :

$$R \cos(\theta) = m\lambda_e \quad (4.18)$$

$$R \cos(\theta) = (2m + 1)\lambda_e/2 \quad (4.19)$$

La longueur d'onde de De Broglie des électrons responsables de la génération d'harmoniques est de l'ordre de grandeur de la distance internucléaire. En effet,

$$\lambda_e = \frac{h}{\sqrt{2m_e E_q}} \quad (4.20)$$

où E_q représente l'énergie du photon harmonique émis par un électron de longueur d'onde λ_e . Ainsi, si l'on considère l'harmonique 25 ($E_{25} = 38.75 \text{ eV}$), $\lambda_e = 1.97 \text{ \AA}$

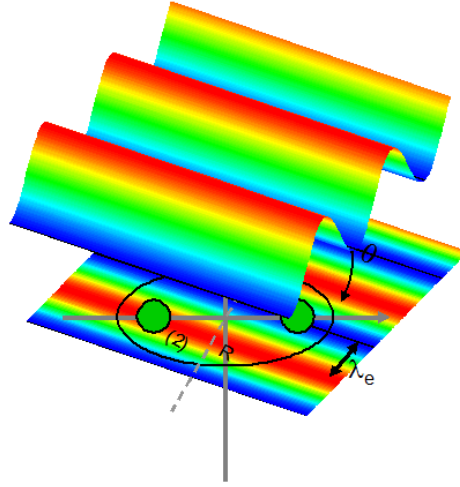


FIG. 4.6: Illustration du modèle à deux centres émetteurs pour la molécule d'azote simplifiée. L'onde plane représente le paquet d'onde électronique qui retourne vers la molécule. Dans le cas présenté ici, le paquet d'onde électronique est déphasé de π entre les deux noyaux, conduisant à des interférences destructives.

alors que la distance internucléaire est de l'ordre de 1.1\AA . Dans ce cas, pour une certaine orientation de la molécule, il existera certaines longueurs d'onde électroniques pour lesquelles l'onde plane électronique présentera un déphasage de π entre les deux noyaux d'azote (Fig. 4.6), entraînant un phénomène d'interférences destructives.

La figure 4.7(A) représente l'ordre harmonique pour lequel les interférences destructrices ont lieu pour différentes molécules en fonction de l'orientation. Parmi les exemples présentés, N_2 et H_2 possèdent une symétrie σ_g (les conditions d'interférences destructives sont donc celles de la formule (4.14) alors que O_2 et CO_2 une symétrie π_g (formule (4.18)).

Par conséquent, les spectres que nous mesurerons seront modifiés en fonction de l'angle d'alignement des molécules. Les spectres harmoniques calculés numériquement présentent clairement un minimum dû à ces interférences destructives, minimum dont la position varie avec l'orientation des molécules (Lein et al., 2002b). L'ensemble des graphes sur la partie droite de la figure 4.7 représentent les spectres d'harmoniques générés dans H_2^+ pour différentes orientations. Quelle que soit la méthode utilisée pour le calcul, le minimum dû aux interférences destructives est clairement visible sur les courbes moyennées. De plus, la position de ce minimum varie avec l'orientation en accord avec le modèle.

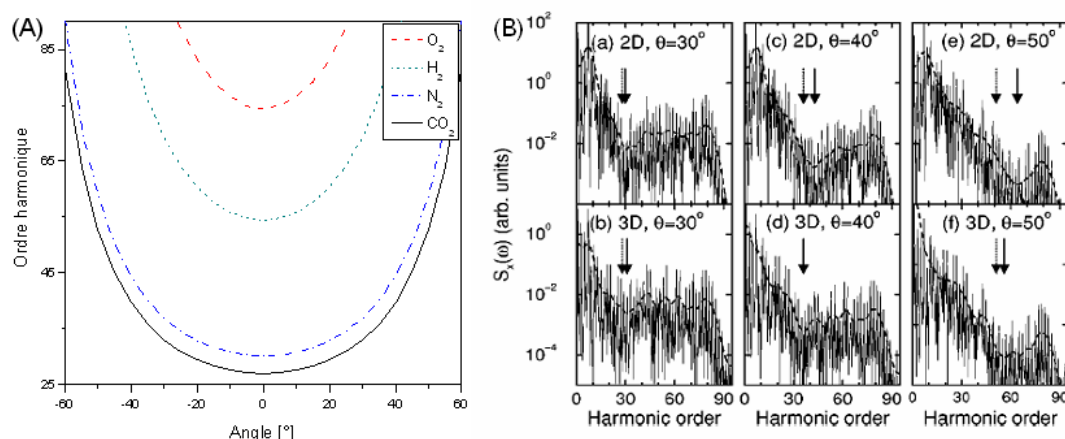


FIG. 4.7: (A) Position prédite par les formules (4.14) ou (4.18) de l'interférence destructrice pour différentes molécules en fonction de leur orientation par rapport à la direction de polarisation du laser d'alignement. (B) Spectres harmoniques calculés pour différentes orientations de H_2^+ . (a), (c), (e) : calculs 2D. (b), (d), (f) : calculs 3D. Les courbes en pointillés représentent le spectre moyenné, les flèches pleines la position des interférences et les flèches grises la position attendue d'après l'équation (4.18). D'après [Lein et al. \(2003\)](#).

Cependant, d'autres paramètres varient avec l'orientation. C'est le cas de la section efficace d'ionisation (dans le cas de l'azote par exemple, elle est maximale lorsque les molécules sont parallèles à la polarisation du laser d'ionisation). Il nous faut donc disposer d'un moyen de distinction entre ces différentes contributions. Plusieurs approches ont été adoptées. Ainsi, [Kanai et al. \(2005\)](#) ont mesuré en parallèle le signal harmonique et le signal d'ions, [Itatani et al. \(2004\)](#) ont utilisé une calibration par un gaz rare et [Vozzi et al. \(2005\)](#) la dépendance de la génération d'harmoniques avec l'ellipticité. Cependant, certains travaux contestent leurs interprétation ([Le et al., 2006](#)). Nous présenterons au chapitre 6 notre voie d'étude basée sur la mesure de la phase spectrale, laquelle nous permettra de résoudre ce problème et de nous apporter des informations supplémentaires à la fois sur la structure de la molécule et sur la dynamique électronique lors de la génération d'harmoniques.

4.2.3 Reconstruction tomographique d'orbitale moléculaire

Cette possibilité d'utilisation de la génération d'harmoniques comme sonde de l'orbitale HOMO des molécules fut une des motivations principales de ce travail

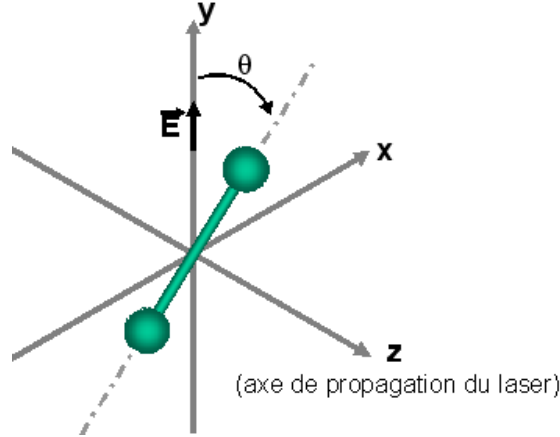


FIG. 4.8: Coordonnées utilisées pour le calcul du dipôle

de thèse. Selon le modèle précédemment décrit, la simple observation d'un spectre devrait nous permettre de remonter à la distance internucléaire. La caractérisation complète de ce rayonnement se révèle être une source bien plus précise de renseignements. En effet, les harmoniques résultant de la recombinaison cohérente d'un paquet d'onde électronique issu de l'orbitale HOMO d'une molécule sur cette même orbitale, les propriétés de l'orbitale sont encodées dans le rayonnement UV. Effectuer une expérience de génération d'harmoniques dans des molécules présentant une certaine orientation revient à effectuer une caractérisation de la structure des molécules dans un certain plan. En utilisant une ensemble de mesures effectuées pour différentes orientations, [Itatani et al. \(2004\)](#) ont pu effectuer, à la manière des techniques d'imagerie médicales, une reconstruction tomographique de l'orbitale HOMO de l'azote. Nous allons dans ce paragraphe détailler cette méthode, puis nous allons essayer de montrer les améliorations que nous pouvons lui apporter.

Nous avons vu précédemment que le spectre harmonique était donné, si l'on suppose que l'accord de phase est parfait, par l'équation (4.10), qui, sous une autre forme, peut s'écrire :

$$\begin{aligned} A(\omega) &= \omega^4 |a(\mathbf{k}(\omega)) \int \psi_0^*(\mathbf{r}) \mathbf{r} e^{i\mathbf{k}(\omega) \cdot \mathbf{r}} d\mathbf{r}|^2 \\ &= \omega^4 |a(\mathbf{k}(\omega)) I(\theta, \omega)|^2 \end{aligned} \quad (4.21)$$

où $a(\mathbf{k}(\omega))$ est l'amplitude complexe de la composante ω du paquet d'onde électronique. Intéressons nous dans un premier temps à l'intégrale $I(\theta, \omega)$ présente dans

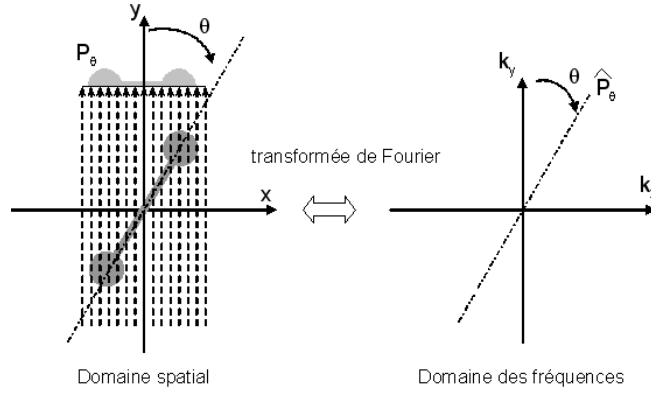


FIG. 4.9: Illustration du théorème des tranches de Fourier

l'équation (4.21). Il est possible de l'écrire comme une transformée de Fourier :

$$\int \psi_0^*(\mathbf{r}) \mathbf{r} e^{i\mathbf{k}(\omega) \cdot \mathbf{r}} d\mathbf{r} = TF_{y \rightarrow k} \left\{ \iint dx dz \psi_0 \mathbf{r} \right\} \quad (4.22)$$

Soit encore

$$\begin{aligned} \int \psi_0^*(\mathbf{r}) \mathbf{r} e^{i\mathbf{k}(\omega) \cdot \mathbf{r}} d\mathbf{r} &= TF_{y \rightarrow k} \{ P_\theta(f_\theta) \} \\ &= \hat{P}_\theta \end{aligned} \quad (4.23)$$

avec \hat{P} la transformée de Fourier de $P_\theta(f_\theta)$, projection de la fonction définie par

$$f_\theta = \psi_0 \mathbf{r} \quad (4.24)$$

Le théorème des tranches de Fourier stipule que la transformée de Fourier d'une projection P_θ est égale à une coupe à l'angle θ de la transformée de Fourier bidimensionnelle de l'objet initial (Fig. 4.9). L'obtention des projections pour un échantillon d'angles θ permet alors d'obtenir une représentation bidimensionnelle de l'objet dans l'espace de Fourier, qu'il est alors possible d'inverser afin de retrouver l'objet réel. C'est le principe de la tomographie, couramment utilisé en médecine par exemple. Comme nous le verrons par la suite (chapitre 5.1), il est possible d'aligner un ensemble de molécules selon une direction privilégiée grâce à une impulsion laser. De plus, en changeant la direction de polarisation de cette impulsion d'alignement, l'orientation des molécules peut être modifiée. La détermination de la fonction $I(\theta, \omega)$ pour différents angles nous permettra donc de déterminer la fonction d'onde ψ_0 dans l'espace des fréquences, puis dans l'espace réel par inversion.

Cependant cette mesure n'est pas directe. Tout d'abord, P_θ n'est pas la projection de la fonction d'onde mais du produit $\mathbf{r}\psi_0$. Il est néanmoins aisé, lors d'une

$I_{p,N_2} = 15.6 \text{ eV}$	$I_{p,CO_2} = 13.77 \text{ eV}$
$I_{p,Ar} = 15.7 \text{ eV}$	$I_{p,Kr} = 14 \text{ eV}$

TAB. 4.1: Potentiels d'ionisation des différents gaz étudiés

dernière étape, de diviser le résultat par r pour retrouver la fonction d'onde.

La formule (4.21) suppose que l'accord de phase est parfait, afin de pouvoir relier simplement la réponse d'une molécule unique et le signal total. Afin de satisfaire au mieux cette condition, nous avons généré le rayonnement harmonique à éclairément modéré, afin d'éviter les problèmes liés à l'ionisation du milieu. De plus, nous avons sélectionné uniquement les contributions des trajectoires courtes en focalisant le faisceau laser juste à l'avant du jet et en effectuant les mesures sur l'axe de propagation (Salières et al., 2001).

La mesure du spectre ne donne de plus pas un accès direct à l'intégrale I . Il reste à déterminer le terme $a(\mathbf{k}(\omega))$. Nous utilisons un gaz atomique dont les propriétés d'ionisation sont semblables à celles de la molécule étudiée (Itatani et al., 2004). Nous avons concentré nos études sur deux molécules, l'azote et le dioxyde de carbone, deux molécules simples et linéaires mais qui présentent chacune une symétrie différente (σ_g^+ dans le cas de N_2 , π_g^- pour CO_2). Nous les avons comparées respectivement à l'argon et au krypton. En effet, ces deux couples possèdent des potentiels d'ionisation très proches (Tab. 4.1), leur réponse au champ laser sera donc du même ordre. Le taux d'ionisation d'une molécule varie en fonction de son orientation par rapport à la polarisation du champ laser, mais cette variation est faible. De plus, elle est compensée par la variation avec l'orientation des propriétés de la barrière de potentiel que franchit le paquet d'ondes électroniques lors de la première étape de la génération. De ce fait, nous pouvons écrire :

$$\begin{aligned} a_{ref}(\mathbf{k}(\omega)) &= a(\mathbf{k}(\omega)) \\ &= \omega^{-2} \sqrt{A_{ref}} \left[\left| \int \psi_{0,ref}^*(\mathbf{r}) \mathbf{r} e^{i\mathbf{k}(\omega) \cdot \mathbf{r}} d\mathbf{r} \right|^2 \right]^{-1/2} \end{aligned} \quad (4.25)$$

Le dipôle de l'atome de référence, dont l'orbitale est connue, est déterminé par le calcul.

Dans le cas de la génération d'harmoniques, le dipôle est une grandeur vectorielle complexe. Aussi la simple mesure du spectre est insuffisante. Il est nécessaire de caractériser le rayonnement à la fois en amplitude, phase et direction de polarisation. La mesure spectrale est aisée. La phase spectrale est une quantité plus difficile à déterminer, mais différentes techniques de caractérisation ont été développées ces dernières années, dont les mesures de types RABBITT que nous

avons mises en places à Saclay (voir paragraphe 5.2.4). Enfin, lors de la génération d'harmoniques dans les gaz atomiques, le rayonnement UV présente la même direction de polarisation que le laser incident. Ce n'est plus le cas dans les molécules, pour lesquelles la direction de polarisation du rayonnement harmonique varie selon l'ordre considéré et selon l'orientation de la molécule (Levesque, 2006). La mesure de la polarisation des harmoniques est donc a priori nécessaire, bien que dans un premier temps, ces variations étant faibles, nous ayons supposé les polarisations parallèles et indépendantes de l'orientation.

Dans le cas général, cet ensemble de mesures nous permet de déterminer le dipôle $\mathbf{d}(\omega, \theta)$ pour toutes les orientations. Nous pouvons donc ensuite effectuer l'inversion en utilisant le théorème des tranches de Fourier. Pour cela, nous définissons deux fonctions f_x et f_y telles que :

$$\begin{cases} f_x(x, y) &= \sum_{\omega} \sum_{\theta} [d_x(\omega, \theta) \sin \theta + d_y(\omega, \theta) \cos \theta] \exp[ik(\omega)(x \sin \theta + y \cos \theta)] \\ f_y(x, y) &= \sum_{\omega} \sum_{\theta} [-d_x(\omega, \theta) \cos \theta + d_y(\omega, \theta) \sin \theta] \exp[ik(\omega)(x \sin \theta + y \cos \theta)] \end{cases} \quad (4.26)$$

La fonction d'onde ψ_0 est alors donnée par :

$$\psi_0(x, y) = \Re \left[\frac{f_x(x, y)}{x} + \frac{f_y(x, y)}{y} \right] \quad (4.27)$$

Un code de reconstruction tomographique est en cours de développement par Richard Taïeb et Jérémie Caillat du Laboratoire de Chimie Physique, Matière et Rayonnement de Paris. Il permet de calculer le dipôle atomique ainsi que les deux fonctions définies en (4.26). Itatani et ses collaborateurs ne disposaient, pour la reconstruction tomographique de l'orbitale de N_2 , que de l'amplitude des harmoniques. Ils ont supposé connue la phase spectrale, qu'ils ont ainsi injectée dans leur code. Notre programme nous permettra de vérifier l'importance de cette grandeur et son influence sur la reconstruction de l'orbitale moléculaire.

Chapitre 5

Techniques expérimentales

5.1 Alignement des molécules

Comme nous l'avons précisé au paragraphe précédent, nous devons disposer, pour les mesures de tomographie par exemple, d'un moyen d'aligner les molécules que nous allons étudier selon une direction donnée. Différentes techniques ont été mise au point pour obtenir cet alignement, chacune avec ses avantages et ses inconvénients propres. Ainsi, dans les cas de molécules polaires, il est possible d'utiliser un champ électrique statique intense ([Loesch and Remscheid, 1990](#); [Friedrich and Herschbach, 1991](#); [Wu et al., 1994](#)). Si l'énergie d'interaction des molécules avec ce champ est supérieure à leur énergie rotationnelle, elles vont s'orienter. L'avantage de cette technique est qu'elle permet plus que l'alignement des molécules : non seulement elles se disposent parallèlement les unes aux autres, mais dans le cas de molécules non symétriques elles s'orientent dans le même sens. Cependant, elle n'est pas générale : il faut disposer de molécules qui puissent être fortement refroidie dans une expansion supersonique et qui possèdent un fort moment dipolaire. Nous avons pour notre part choisi d'utiliser une technique alternative favorisant l'outil que nous avons à disposition, à savoir les impulsions laser ultracourtes.

Lorsqu'une molécule est soumise à un champ laser fort, elle se polarise. L'interaction entre le dipôle ainsi créé et le champ électrique va engendrer un couple qui va mettre la molécule en rotation. Cet effet dépend de l'orientation de la molécule par rapport à la direction du champ électrique, et donc de l'anisotropie de sa polarisabilité dynamique $\Delta\alpha = \alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}$, où α_{\parallel} est la composante du vecteur polarisabilité suivant l'axe internucléaire et α_{\perp} la composante orthogo-

nale. Pour les molécules que nous avons étudiées, on a toujours $\Delta\alpha > 0$, donc les molécules cherchent à s'aligner parallèlement au champ laser. Il existe deux techniques pour l'alignement des molécules par laser : l'alignement adiabatique et l'alignement impulsional. Nous avons choisi d'utiliser cette dernière méthode, mais dans un premier temps nous allons très brièvement présenter la première (pour une revue plus détaillée, voir [Stapelfeldt and Seideman \(2003\)](#)).

5.1.1 Alignement adiabatique

Pour ce type de technique, le laser utilisé est un laser dont les impulsions sont longues d'une centaine de picosecondes. La lente augmentation de l'éclairement laser va forcer l'alignement progressif des molécules suivant l'axe de polarisation du laser tout au long de l'impulsion ([Friedrich and Herschbach, 1995a,b](#)). En effet, on peut écrire le potentiel d'interaction entre le champ électrique et la molécule comme

$$U = -\frac{1}{2}(\alpha \cdot \mathbf{E})^2 \quad (5.1)$$

On a alors

$$U = -\frac{1}{2}\alpha_{\perp}E^2 - \frac{1}{2}\Delta\alpha E^2 \cos^2(\theta) \quad (5.2)$$

Le premier terme du second membre de (5.2) est un terme constant qui ne joue pas dans l'alignement. Par le second terme, on voit que la molécule subit un couple dépendant de son inclinaison par rapport au champ. La lente montée du champ va permettre d'atteindre l'alignement de toutes les molécules, quelles que soient leurs orientations initiales, autour du maximum de l'impulsion. Le degré d'alignement atteint est alors très bon, avec un fort pourcentage de molécules alignées. Cette technique présente cependant un inconvénient majeur pour le type d'application que nous envisageons : lorsque le champ laser diminue, l'effet d'alignement disparaît. De ce fait, afin d'étudier la génération d'harmoniques dans un milieu aligné, les impulsions d'alignement et de génération doivent être présentes simultanément dans le jet. Cependant, la génération d'harmoniques est un mécanisme hautement non linéaire, extrêmement sensible de ce fait aux fluctuations d'éclairement. Il faut donc minimiser l'importance des phénomènes d'interférences, conséquences de la superposition temporelle des impulsions. Or la synchronisation entre les deux impulsions n'est pas contrôlée avec une précision interférométrique, ce qui nous empêche de connaître avec précision l'éclairement résultant.

5.1.2 Alignement impulsif

L'alignement impulsif permet au contraire de faire apparaître l'alignement après le passage de l'impulsion et évite toute superposition avec une seconde impulsion sonde.

Les lasers nécessaires pour ce type d'alignement doivent délivrer des impulsions plus courtes que la période de rotation des molécules étudiées. C'est le cas du laser LUCA, qui délivre des impulsions de 50 fs, bien plus courtes que les périodes de rotation T_{rot} de CO_2 et N_2 (respectivement 42.7 et 8.4ps). Dans ce cas, on peut se représenter le phénomène d'alignement en gardant l'image classique précédente. Pendant le passage de l'impulsion, les molécules n'ont pas le temps de bouger. Cependant, le champ électrique engendre un moment angulaire, fonction de l'angle entre les molécules et la polarisation du champ électrique. Ce moment ΔJ est égal à la dérivée du potentiel U introduit plus haut. De ce fait,

$$\Delta J \propto -\sin(2\theta) \quad (5.3)$$

L'équation (5.3) montre que les molécules les plus inclinées sur l'axe du laser subiront le moment le plus élevé, induisant une vitesse de rotation plus grande, avec pour conséquence un premier alignement peu après le passage de l'impulsion. Cet alignement n'est toutefois que temporaire, chaque molécule continuant d'évoluer avec sa dynamique propre. Le paquet d'onde rotationnel reste cohérent, donnant lieu périodiquement au réalignment des molécules, à des instants multiples (ou sous multiples) de la période rotationnelle de la molécule ([Rosca-Pruna and Vrakking, 2001](#)).

Expliquons brièvement le mécanisme de façon plus précise. Avant l'interaction avec le laser, le milieu peut être décrit au niveau rotationnel par une superposition statistique d'états de moments angulaires $|J, M\rangle$, où J est le moment orbital ($J = 0, 1, 2, \dots$) et $M = -J, -(J-1), \dots, (J-1), J$. La distribution du moment angulaire des molécules varie selon la loi de Boltzmann,

$$P_J \propto g_J(2J+1)\exp(-E_J/kT) \quad (5.4)$$

où g_J est un facteur provenant des règles de symétrie dues au spin des molécules, représentant le poids relatif des états de J pairs et impairs, le facteur $(2J+1)$ résulte de la dégénérescence de chaque niveau J en sous-niveaux M et E_J est l'énergie rotationnelle de l'état $|J, M\rangle$.

L'impulsion laser va créer dans chaque molécule un paquet d'ondes rotationnelles (une superposition d'états $|J, M\rangle$) par couplage Raman, peuplant les états tels que

$\Delta J = \pm 2, 0$. Le paquet d'ondes ainsi créé dans une molécule dépend de son état initial. De ce fait, pour calculer la réponse du milieu, il faut calculer le paquet d'ondes rotationnelles induit à partir de chaque état initial dans la distribution de Boltzmann.

L'interaction avec le laser est décrite par l'équation de Schrödinger ([Friedrich and Herschbach, 1995a](#))

$$i\frac{\partial\Psi}{\partial t} = [B\mathbf{J}^2 - U_0(t)\cos^2\theta]\Psi \quad (5.5)$$

avec \mathbf{J} l'opérateur de moment angulaire et $U_0(t) = -\frac{1}{2}\Delta\alpha E^2$. Christian Cornaggia et Sébastien Weber ont réalisé une étude numérique de l'alignement des molécules en fonction de la température initiale et de l'éclairement du laser d'alignement. Leurs calculs permettent d'étudier l'évolution de la distribution angulaire des molécules en fonction du temps après l'interaction avec l'impulsion d'alignement. Il est ainsi possible d'étudier l'effet de l'éclairement de l'impulsion d'alignement ou de la température du milieu sur la qualité du paquet d'onde. Plutôt que de représenter la distribution angulaire à chaque instant, l'évolution de l'alignement est généralement représenté par la quantité $\langle \cos^2\theta \rangle$, moyenne sur l'ensemble de la distribution du \cos^2 de l'angle θ entre l'axe de polarisation du laser et l'axe moléculaire. Les figures 5.1(I, II, III) représentent la distribution angulaire des molécules à différents instants. La figure (a) représente l'évolution du $\langle \cos^2\theta \rangle$ en fonction du temps. A l'instant $t = 0$ les deux impulsions sont superposées. Lorsque $\langle \cos^2\theta \rangle \approx 0.33$, la distribution angulaire des molécules est isotrope (figure (I)). Après un délai de 4.1 ps (égal à la moitié de la période de rotation de l'azote), le paquet d'onde se remet en phase, et la distribution angulaire des molécules devient piquée suivant l'axe de polarisation du laser d'alignement (figure (II)). Cet alignement est suivi d'une diminution de la valeur du $\langle \cos^2\theta \rangle$, ce qui correspond à un antialignement des molécules (elles sont alignées dans le plan perpendiculaire à la polarisation du faisceau laser, figure (III)). Une remise en phase partielle du paquet d'onde, correspondant au délai $T_{rot}/4$ est aussi visible.

Le signal harmonique (Fig. 5.1(b)) varie avec l'alignement des molécules. Dans l'azote, il est maximal lorsque les molécules sont alignées dans la direction de polarisation du laser de génération, et minimal lorsqu'elles sont antialignées.

Afin d'étudier l'effet de la température du jet sur la qualité de l'alignement des molécules, nous avons utilisé différents jets dont nous avons fait varier le diamètre de sortie. Plus ce diamètre est important, plus la température rotationnelle des molécules sera élevée. La figure 5.2(a) compare le signal de l'harmonique 23 générée dans l'azote pour deux températures différentes. Lorsque le gaz est plus

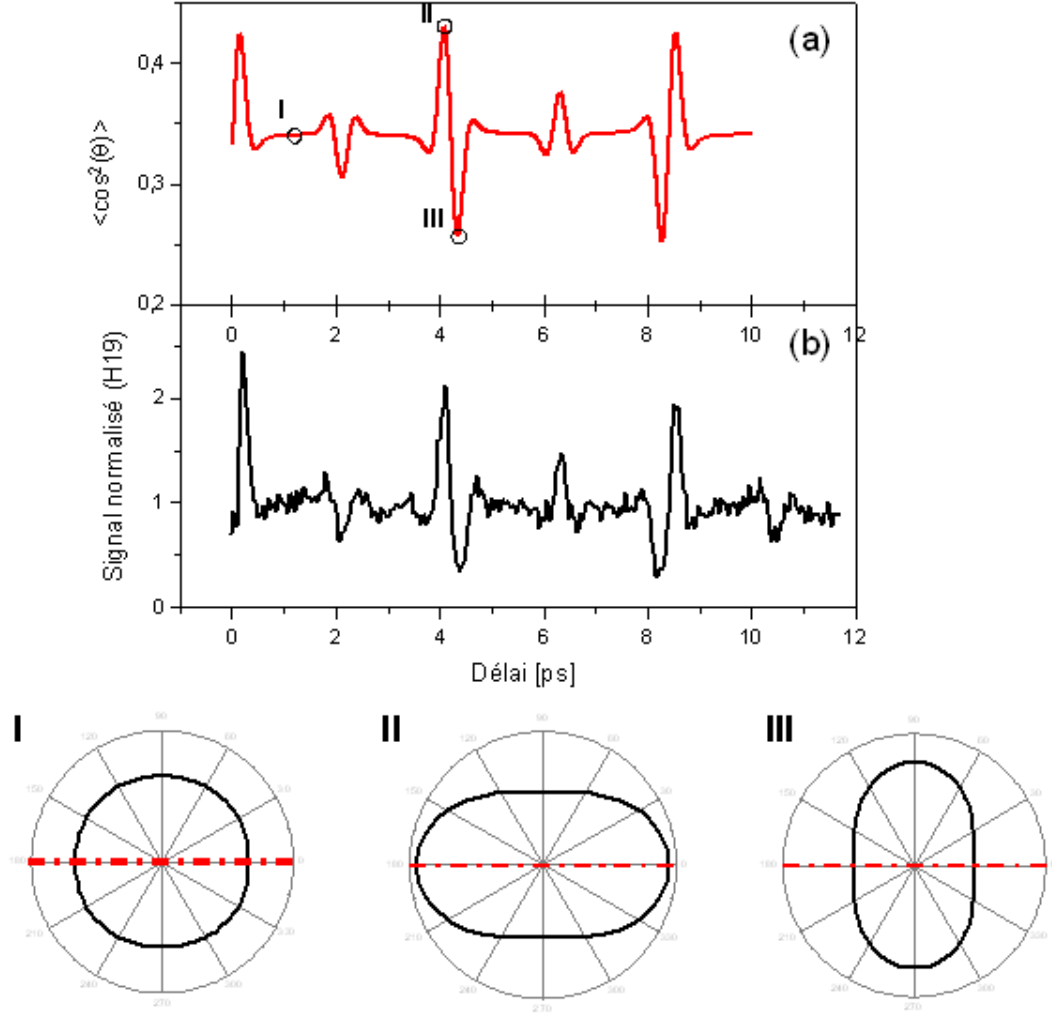


FIG. 5.1: (a) Évolution de $\langle \cos^2 \theta \rangle$ calculé. (b) Évolution expérimentale du signal harmonique (H19) généré dans l'azote en fonction du délai entre les faisceaux d'alignement et de génération. (I), (II) et (III) : distributions angulaires pour différents délais (respectivement 1ps, 4.1 ps et 4.3 ps). L'axe pointillé correspond à la direction de polarisation du laser d'alignement.

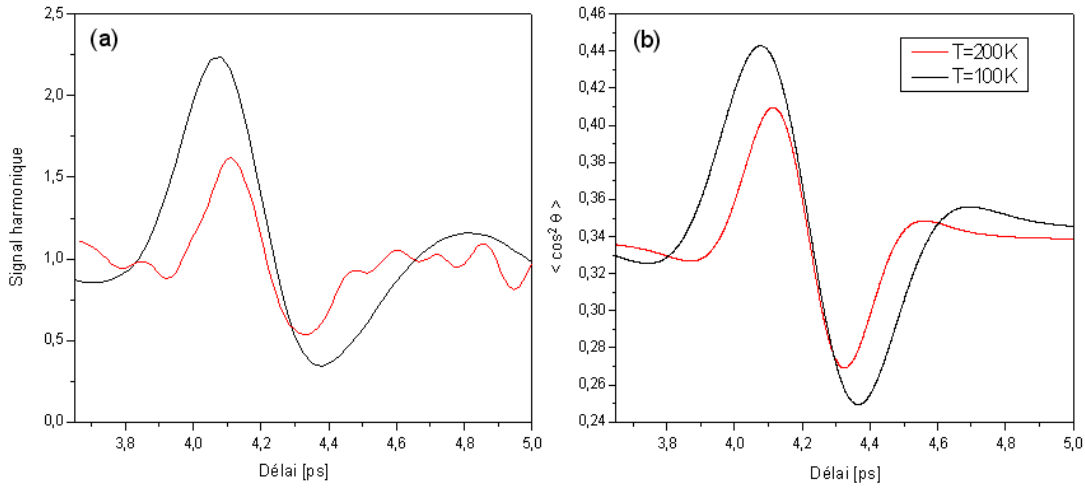


FIG. 5.2: Effet de la température du jet sur la qualité de l’alignement des molécules d’azote. (a) Signal harmonique (H23) en fonction du délai pour deux températures différentes. En noir, l’ouverture de la buse est de $300 \mu m$, et la température estimée à 100 K. En rouge, ouverture de 1 mm pour une température de 200 K environ. (b) Évolution de $\langle \cos^2 \theta \rangle$ calculé pour ces mêmes températures.

froid (courbe noire), la modulation du signal est plus importante et la durée de la remise en phase du paquet d’onde est plus importante. Cela est dû à une distribution plus piquée en niveau J du paquet d’onde lorsque la température diminue. Les simulations permettent de reproduire cette évolution (Fig. 5.2(b)).

Nous pouvons enfin étudier l’influence de l’éclairement du faisceau d’alignement sur le signal harmonique. Expérimentalement, cette étude n’est pas immédiate. En effet, si l’éclairement d’alignement est trop important, ce faisceau va générer lui aussi un rayonnement harmonique, dans un ensemble de molécules non alignées. Afin de différencier ces deux sources harmoniques, nous utilisons le principe de la détection synchrone. Pour cela, nous envoyons tout d’abord le faisceau d’alignement, puis le faisceau de génération synchronisé avec le faisceau d’habillage (voir la description du montage expérimental et des techniques de mesures en 5.2). La superposition temporelle des impulsions infrarouge d’habillage et des harmoniques générées par le faisceau de génération va permettre l’apparition de raies satellites entre chaque pic harmonique dans le spectre de photoélectrons. La mesure des variations d’amplitude de ces raies satellites en fonction du délai entre faisceaux d’alignement et de génération permet d’étudier la variation de l’efficacité de génération en fonction de l’orientation des molécules.

Expérimentalement (Fig. 5.3(a)), la largeur temporelle de la remise en phase di-

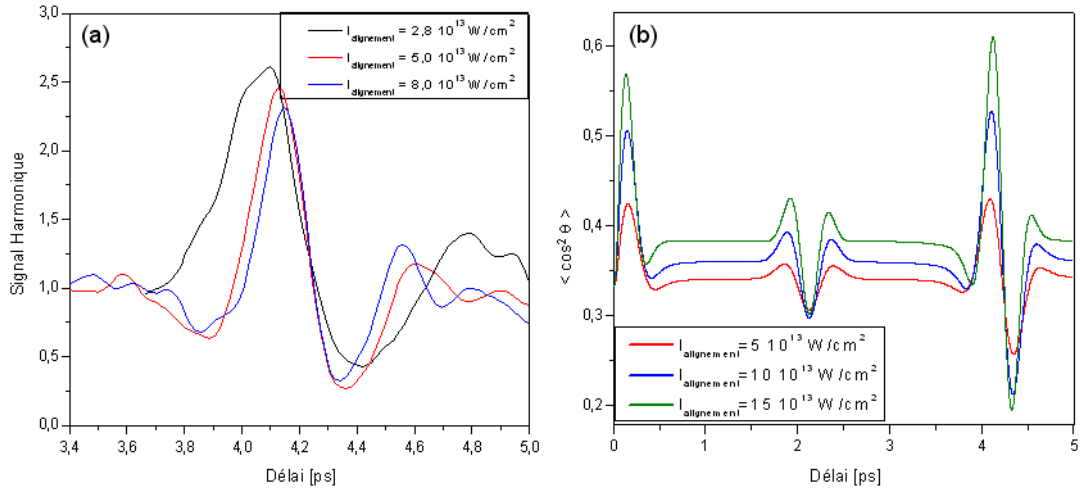


FIG. 5.3: Effet de l'éclairement du faisceau d'alignement sur l'évolution du signal harmonique généré par N_2 . (a) Signal mesuré (raie satellite 22) pour trois éclairagements (noir : $2.8 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$, rouge : $5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$, bleu : $8 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$). (b) Évolution de $\langle \cos^2 \theta \rangle$ pour trois éclairagements (rouge : $5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$, bleu : $10 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$, vert : $15 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$).

minue lorsque l'éclairement augmente. Les simulations (Fig. 5.3(b)) indiquent une évolution similaire.

Ces deux techniques présentent l'avantage de pouvoir s'appliquer à toute molécule présentant une polarisabilité anisotrope. De plus, elles permettent l'obtention de degrés d'alignement supérieurs à ceux que peuvent donner les méthodes utilisant des champs électriques statiques. En l'état elles ne peuvent produire que l'alignement des molécules, mais il est possible de les orienter en utilisant par exemple un faisceau laser d'alignement polarisé elliptiquement (Larsen et al., 2000) ou deux impulsions d'alignement retardées aux polarisations croisées, permettant d'obtenir un alignement suivant une direction puis une seconde (Underwood et al., 2005; Lee et al., 2006). Dans le cadre de la génération d'harmoniques, orienter les molécules permettrait de briser la symétrie du milieu. Cela a pour conséquence l'apparition dans le spectre des harmoniques d'ordres pairs, qui n'ont jusqu'à présent été observées que lors de la génération par un mélange de couleurs (Eichmann et al., 1995; Kim et al., 2005; Mauritsson et al., 2006).

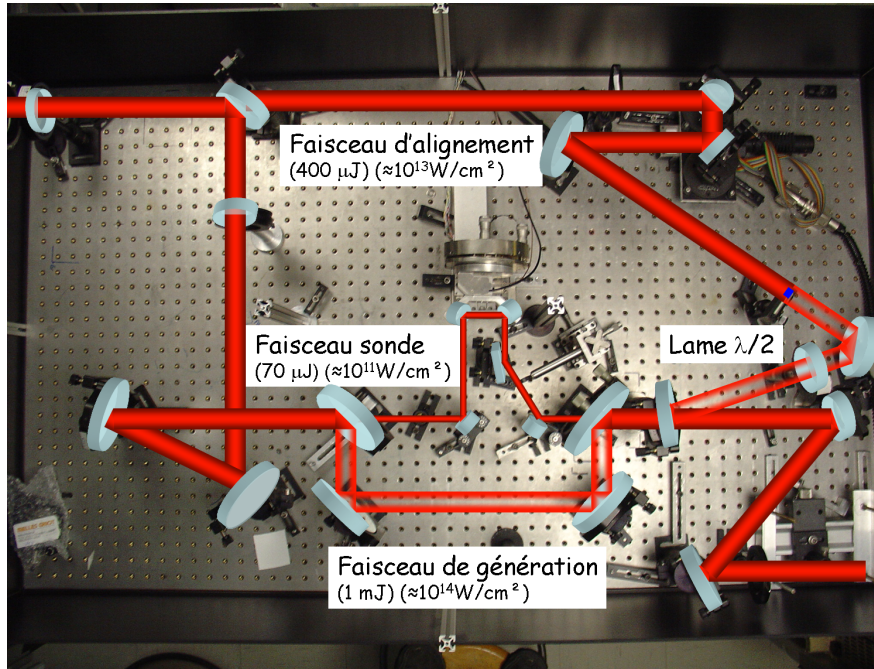


FIG. 5.4: Dispositif optique pour les mesures de phases harmoniques dans les molécules alignées.

5.2 Dispositif expérimental

Les mesures de caractérisation du rayonnement harmonique généré dans les molécules alignées, et plus particulièrement les mesures de phases, nécessitent un dispositif expérimental complexe, associé à des techniques de détection difficiles à mettre en oeuvre. Le dispositif optique se compose en effet de deux lignes à retard imbriquées, afin de fournir trois faisceaux distincts. Le retard entre chacune de ces impulsions doit être réglable, tout comme doivent l'être les différentes caractéristiques des faisceaux. La méthode de détection utilisée, à savoir la spectroscopie d'électrons, est-elle aussi particulièrement délicate. Les deux principaux problèmes que nous avons dû surmonter ont été l'alignement des faisceaux et leur stabilisation dans la zone d'interaction du détecteur, ainsi que les différentes pannes du système, vieillissant, que des solutions plus ou moins provisoires ont rendu très sensible aux perturbations extérieures.

5.2.1 Alignement des molécules

Le laser que nous avons utilisé pour ces campagnes expérimentales est le laser LUCA du SPAM. Il fournit des impulsions laser de 50 fs, centrée à 800 nm. Ce faisceau incident est divisé en deux à l'entrée de la table expérimentale par une lame séparatrice (80% de réflexion, 20% de transmission). La partie transmise du faisceau est utilisée pour l'alignement des molécules. Le délai entre cette impulsion et l'impulsion principale est contrôlé grâce à la partie mobile de la première ligne à retard, constituée de deux miroirs fixés sur une platine de translation motorisée, présentant un pas de 0.2 μm . Une pastille opaque permet de rendre ce faisceau annulaire. De plus, afin de varier l'orientation des molécules, il passe au travers d'une lame demi-onde dont la rotation est pilotée par une platine de rotation de haute précision motorisée (le déplacement de la rotation est de $1/1000^{\text{ème}}$ de degré par pas). Enfin, un diaphragme nous permet de régler son énergie de telle sorte que l'éclairement au foyer soit juste inférieur à celui nécessaire pour générer des harmoniques (environ 10^{13} W/cm^2) et parallèlement à cela de nous assurer que le volume dans lequel les molécules seront alignées est plus important que le volume de génération. Comme nous l'avons vu précédemment, la température rotationnelle du jet de gaz est un paramètre primordial pour l'alignement. Il est possible très simplement de diminuer la température des molécules au niveau de la zone d'interaction avec le laser : il suffit d'augmenter la distance entre le faisceau et la sortie du gaz, en levant le jet dans notre montage. L'ouverture du jet que nous avons utilisé est de 800 μm , ce qui en fait un jet très effusif. De ce fait, le meilleur compromis entre température et densité (i.e. niveau de signal) se situait pour une distance de 1 mm.

5.2.2 Montage expérimental pour la génération d'harmoniques et la mesure de phase

La partie réfléchiée par la lame séparatrice est utilisée pour la génération d'harmoniques et pour la mesure de la phase, selon un dispositif semblable à celui décrit dans [Mairesse et al. \(2003\)](#). Ce faisceau est scindé en deux parties par une réflexion sur un miroir troué. Le trou a un diamètre de 8 mm, alors que le faisceau incident a un diamètre maximum d'environ 35 mm. Cependant, dans les conditions habituelles le faisceau central est diaphragmé à 3 ou 4 mm et le faisceau externe à 20 mm au maximum. La répartition spatiale de l'énergie du laser incident présentant un profil carré, le faisceau annulaire est le plus énergétique. Il

constitue le faisceau de génération. Ce dernier se réfléchit ensuite sur deux miroirs fixes, avant de subir une dernière réflexion sur un deuxième miroir troué grâce auquel va s'effectuer la recombinaison avec le faisceau interne. De plus, un dispositif (non représenté sur la figure 5.4) constitué d'une lame demi-onde et de deux polariseurs permet de contrôler son énergie. La partie centrale, appelée faisceau d'habillage, passe par le bras mobile de cette deuxième ligne à retard, constitué de deux miroirs montés sur une translation piézoélectrique. Son énergie, réglée par un diaphragme et par un deuxième ensemble {lame demi-onde/polariseur} est suffisamment faible (quelques dizaines de μJ , afin d'assurer un éclairement au foyer d'environ 10^{11} W/cm^2) pour ne pas générer d'harmonique par la suite. La recombinaison de ces deux faisceaux avec le faisceau d'alignement s'effectue grâce à une lame non polarisante en incidence quasi normale, qui réfléchit et transmet 50% de la lumière incidente. Ces faisceaux recombinaison passent ensuite par un diaphragme commun, puis sont focalisés dans le jet de molécules grâce à une lentille de 1 m de focale. Les deux faisceaux annulaires sont bloqués après le jet de gaz à l'aide d'un diaphragme motorisé, proche de la conjugaison avec le diaphragme de génération (ce qui nous permet de les laisser passer lors de la phase d'alignement optique, puis de les éliminer lors des mesures). Le faisceau infrarouge central ainsi que le faisceau harmonique sont ensuite focalisés dans le jet cible du spectromètre de photoélectrons. Un réseau est de plus placé juste après le miroir torique. Pour réaliser une mesure de phase, il est utilisé à l'ordre zéro. Son utilisation en mode monochromateur (à l'ordre un) combinée à un photomultiplicateur nous permet d'effectuer des mesures spectrales avec une dynamique supérieure et plus rapidement (Fig. 5.5).

5.2.3 Détection

Les photoélectrons produits dans la zone d'interaction du spectromètre sont collectés grâce à une bouteille magnétique, ce qui permet la détection dans un angle solide de 2π stéradians (Kruit and Read, 1983). Les électrons produits avec la même énergie cinétique arrivent en même temps sur le détecteur placé à l'extrémité du tube à temps de vol, qu'elle que soit leur direction initiale. Les galettes de microcanaux utilisées enregistrent le signal d'électrons en fonction du temps avec une résolution de 2 ns. Il est ensuite aisé de convertir ces temps de vol en énergie de photons, à la condition de connaître le potentiel d'ionisation du gaz cible. Pour l'ensemble de nos mesures, nous étions principalement intéressés par le comportement aux ordres élevés. Le néon était donc le candidat idéal : son potentiel d'ionisation de 21.6 eV permet la détection des harmoniques d'ordres

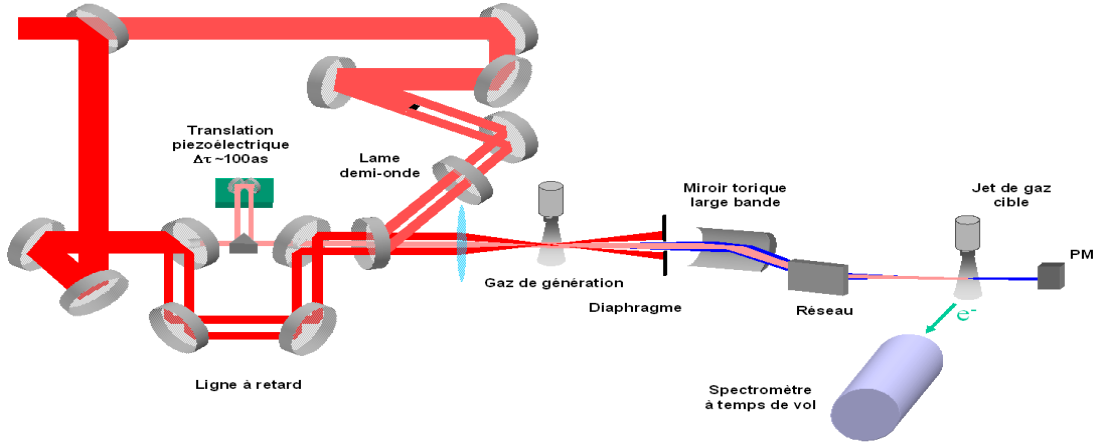


FIG. 5.5: Dispositif expérimental pour les mesures des phases harmoniques.

supérieurs à 15 et sa section efficace d'ionisation est assez plate jusqu'aux ordres élevés (Fig.5.6(a)). La figure Fig.5.6(b) compare la dérivée de la phase relative des harmoniques en fonction de l'ordre mesurée par la technique RABITT dans l'azote non aligné en fonction du gaz de détection. Les deux courbes se chevauchent bien entre les raies satellites 18 à 22 (nous n'expliquons pas pour l'instant la différence observée sur la raie 16, visible de façon plus ou moins prononcée sur toutes les mesures dans l'argon). L'utilisation du néon permet d'observer les ordres les plus élevés, tout en supprimant les ordres inférieurs à 15, ce qui n'est pas préjudiciable pour les applications envisagées. Le niveau du signal étant relativement élevé, chaque point était le résultat d'une accumulation de 100 tirs laser. La durée totale d'une mesure de phase était alors d'un peu plus de 10 minutes (pour une course de la translation piézoélectrique de $2\text{ }\mu\text{m}$ échantillonnée sur 100 positions).

La principale difficulté de cette expérience tient en son alignement. La superposition spatiale entre les faisceaux de génération et d'alignement doit être réalisée avec une précision interférométrique. De même, les faisceaux de génération et d'habillage doivent être colinéaires dans la zone d'interaction du spectromètre. Nous avons pour cela monté un dispositif d'imagerie permettant de visualiser cette zone. Ce dernier nous permet de plus de minimiser les aberrations introduites par le miroir torique. Enfin, nous avons la possibilité de régler finement la hauteur des faisceaux dans le spectromètre afin d'optimiser le signal de photoélectrons grâce à la motorisation de l'inclinaison verticale du miroir torique. Ce qui nous a posé le plus de problème n'a pas tant été le fait d'obtenir ces réglages, mais surtout de les conserver au cours du temps à cause des nombreuses sources de vibrations basses et hautes fréquences. En effet la salle expérimentale est située au premier

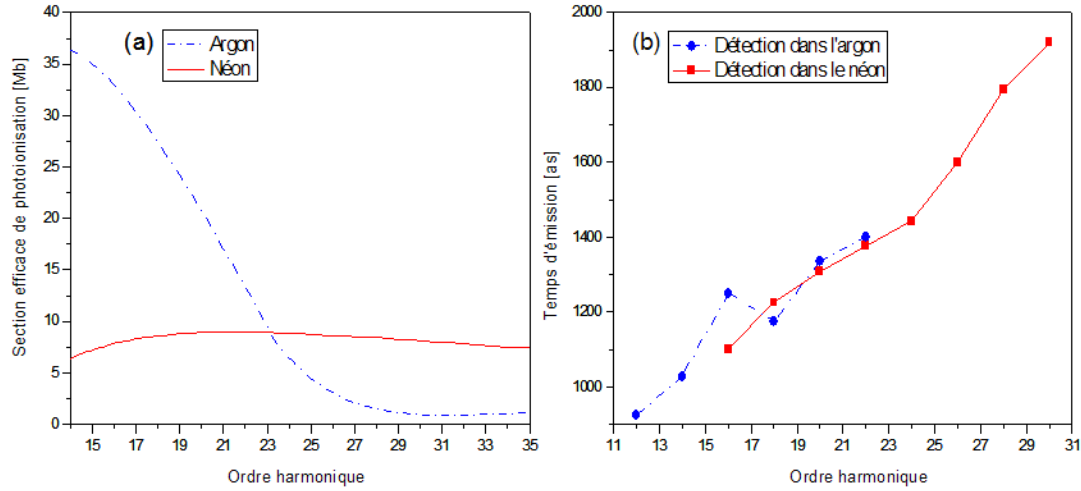


FIG. 5.6: Comparaison des gaz de détection. (a) Sections efficaces de photoionisation de l'argon et du néon. (b) Temps d'émission mesurés dans N_2 non aligné. Dans un cas (cercles), la détection se fait dans l'argon, dans l'autre (carrés) dans le néon.

étage du bâtiment, et accueille un deuxième poste expérimental. De plus, toutes les pompes à vide des différentes expériences sont dans cette même salle. L'élimination, ou du moins la minimisation, de ces vibrations mécaniques a demandé beaucoup d'efforts. Par une analyse pas à pas de l'influence de chacune d'entre elles, nous avons pu minimiser les conséquences de chaque source de vibration. Pour cela, nous avons dû par exemple solidariser chacun des bâtis expérimentaux afin de soumettre toutes les optiques aux mêmes effets, isoler au maximum les pompes primaires et secondaires, etc... Au final, nous avons réussi à obtenir la stabilisation des conditions expérimentales sur au moins deux heures, le temps d'une série de mesures de phase sur un large panel d'orientations des molécules.

5.2.4 Mesures

Nous avons principalement effectué deux types de mesures :

- *Des mesures d'alignement* : Pour ce premier type de mesures, nous faisons varier le retard entre le faisceau de génération et le faisceau d'alignement. Nous mesurons alors l'évolution du spectre de photoélectrons en fonction de ce délai autour de la position de la première remise en phase. Cela nous donne accès à l'évolution de l'efficacité de la génération d'harmoniques en fonction de la distribution angulaire des molécules et donne une mesure qualitative de la qualité

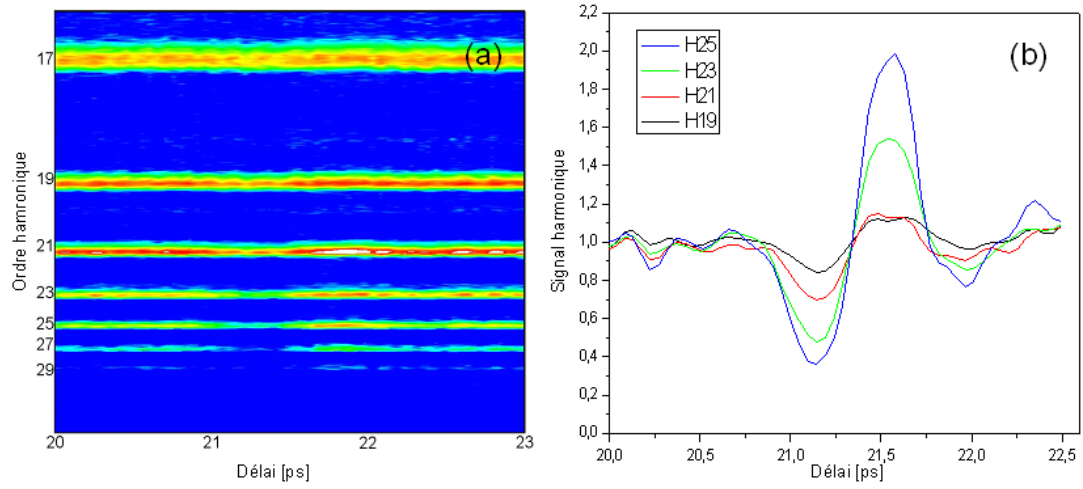


FIG. 5.7: (a) Spectres de photoélectrons obtenus en générant dans le CO_2 et détectant dans le néon, en fonction du délai entre les faisceaux d’alignement et de génération, autour du délai de remise en phase (b) Évolution du signal des harmoniques 19 à 25 extraites de (a). Éclairement d’alignement : $2 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$. Éclairement de génération : $1.2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

de l’alignement. La figure 5.7(a) représente une série de spectres en fonction de ce délai. La figure 5.7(b) représente l’évolution de l’amplitude du signal de certaines harmoniques telle que l’on peut l’extraire de la figure 5.7(a), normalisée au signal obtenu pour chaque harmonique dans un milieu non aligné. L’effet de l’alignement est clairement visible sur l’intensité des harmoniques. Lorsque le délai entre les deux faisceaux est égal au temps de remise en phase, c’est à dire quand les molécules sont alignées parallèlement à la polarisation du laser de génération, l’efficacité de génération diminue. Elle devient maximale lorsque les molécules sont antialignées. Nous reviendrons sur ce point par la suite.

- *Des mesures de phase harmonique* : Une fois les molécules alignées, il est possible de réaliser des mesures de la phase relative des harmoniques en fonction de l’orientation. Nous avons utilisé la technique RABITT (*Reconstruction of Attosecond Beating by Interference of Two-photon Transitions*, reconstruction de battement attoseconde par interférence de transitions à deux photons), proposée par Muller (2002), mise en oeuvre pour la première fois par Paul et al. (2001) et largement exploitée au SPAM. Elle est basée sur la photoionisation à deux photons deux couleurs (infrarouge et UV). Plus explicitement, lorsqu’un atome, de néon par exemple, est soumis au champ UVX, il peut s’ioniser et libérer des électrons dont l’énergie est directement reliée à celle des photons

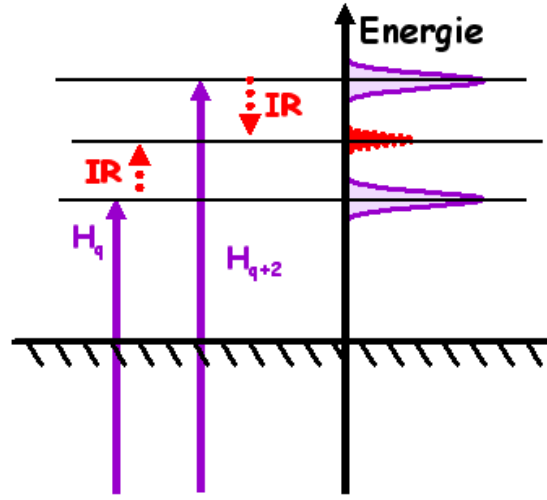


FIG. 5.8: Schéma du principe de la formation des raies satellites.

ionisants. Le spectre des photoélectrons ainsi produits sera donc le reflet direct du peigne de fréquences harmoniques. Si on superpose au champ UVX un champ infrarouge, de nouvelles transitions deviennent possibles : l'atome peut absorber simultanément un photon UVX et un photon infrarouge, ou absorber un photon UVX et émettre un photon infrarouge (Fig. 5.8). De nouveaux pics, appelés raies satellites, vont alors apparaître dans le spectre de photoélectrons, à égale distance de chaque raie harmonique. Lorsque l'éclairement infrarouge est suffisamment faible (quelques 10^{11} W/cm²) pour que les transitions d'ordre supérieur (un photon harmonique et deux photons infrarouges par exemple) soient interdites, seuls ces deux chemins quantiques mènent à la même énergie finale. De ce fait, un phénomène d'interférences quantiques a lieu, ce qui conduit à une modulation de l'amplitude des raies satellites avec le délai entre les deux faisceaux. [Veniard et al. \(1996\)](#) ont montré que l'amplitude du pic satellite d'ordre $q+1$ peut alors s'écrire comme :

$$S_{q+1} = S_{q+1}^0 \cos(2(\omega_0\tau + \varphi_0) + \varphi_q - \varphi_{q+2} + \Delta\varphi^{at}) \quad (5.6)$$

où φ_q et φ_{q+2} sont les phases des harmoniques q et $q+2$, $\Delta\varphi^{at}$ un terme de phase propre au gaz de détection utilisé, calculé par Richard Taïeb du LCPMR à Paris pour le néon. Enfin, $(\omega_0\tau + \varphi_0)$ est la phase du champ d'habillage. C'est ce terme qui, lorsque le délai τ entre les faisceaux harmonique et d'habillage varie, est responsable de l'oscillation de l'amplitude des raies satellites à la fréquence $2\omega_0$ avec une phase égale à $2\varphi_0 + \varphi_q - \varphi_{q+2} + \Delta\varphi^{at}$. Une mesure typique s'effectue pour une course de la cale piézoélectrique de $2 \mu\text{m}$, ce qui correspond à 10 périodes des oscillations des raies satellites. Cette valeur est

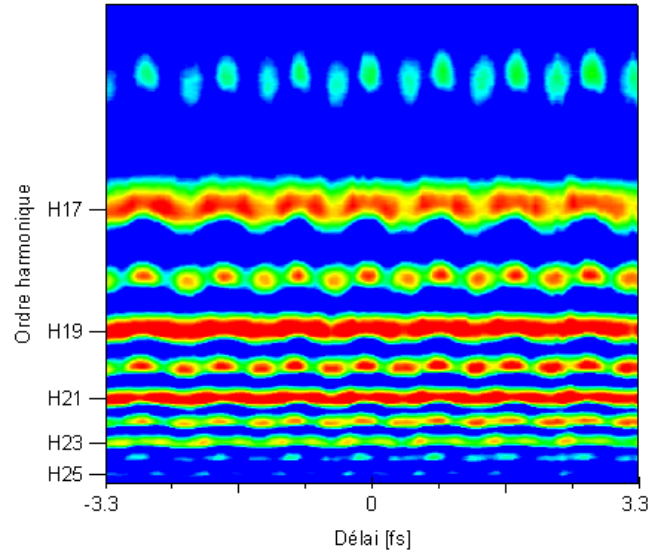


FIG. 5.9: Exemple de mesure RABITT. L'axe vertical représente le temps de vol des photoélectrons, l'axe horizontal le délai entre les faisceaux harmonique et d'habillage. L'éclairement de génération est de $1.5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, l'éclairement d'habillage de $3 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$. Le gaz de génération est l'argon.

le fruit d'un compromis entre la stabilité du dispositif et le rapport signal sur bruit de la transformée de Fourier de la mesure permettant l'extraction de la phase spectrale. En juxtaposant tous ces spectres, on obtient une figure telle que celle présentée Fig. 5.9.

5.2.5 Analyse des mesures RABITT

5.2.5.1 Procédure d'analyse

Une telle mesure va nous permettre d'obtenir la valeur des phases relatives entre les harmoniques successives. La première étape consiste à normaliser l'ensemble des spectres mesurés par le signal total. En effet, dans notre expérience, les faisceaux de génération et d'habillage se recouvrent dans le jet de génération (voir Fig. 5.5), produisant des interférences. L'éclairement infrarouge de génération va donc être modulé en fonction du délai imposé par la translation piézoélectrique. Cette modulation est très faible du fait de l'écart important des éclairements respectifs de chacun des faisceaux, mais la forte non linéarité du phénomène de la génération d'harmoniques va amplifier ces variations. De ce fait, le signal total n'est pas constant, mais oscille à la fréquence du laser ω_0 (Fig. 5.10(a), où l'on

voit cette modulation en fonction du délai, et (b) qui représente le module de la transformée de Fourier de ce signal). On remarque d'ailleurs sur la figure 5.9 que l'amplitude des harmoniques varie avec le délai, avec la même période que les raies satellites mais aussi avec une période double. Après normalisation, on extrait le signal de chaque raie satellite en fonction du délai (Fig. 5.10(c)). Sa transformée de Fourier présente deux pics distincts, l'un représentant une oscillation à ω_0 et l'autre une oscillation à $2\omega_0$. On aperçoit de plus quelques pics supplémentaires autour de ces deux valeurs, que nous attribuons à des instabilités du système de positionnement. Le premier terme, qui subsiste malgré l'étape de normalisation, a une autre origine : le diaphragme utilisé pour bloquer le faisceau de génération n'est pas conjugué avec le diaphragme fixant la taille de ce faisceau. De ce fait, une petite portion du rayonnement infrarouge peut traverser cet obstacle (phénomène encore accentué par la diffusion du faisceau par le gaz du jet de génération) et interférer avec le champ d'habillage au niveau de jet de détection. L'intérêt d'une analyse par transformée de Fourier est de permettre de s'affranchir de ces fréquences additionnelles en limitant la mesure aux fréquences voulues. On peut remarquer sur les figures 5.10(b) et (d) que la composante continue de la transformée de Fourier a été filtrée afin de mettre en évidence les oscillations à ω_0 .

L'extraction de la phase du pic à $2\omega_0$ permet alors d'obtenir le terme $2\varphi_0 + \varphi_q - \varphi_{q+2} + \Delta\varphi^{at}$. Comme nous l'avons précisé précédemment, le terme de phase atomique $\Delta\varphi^{at}$ peut être calculé. Enfin, le terme $2\varphi_0$ est indépendant de l'ordre harmonique mais est nécessaire lors de l'étude de la dynamique électronique : il permet de synchroniser l'émission harmonique avec le champ laser infrarouge. Pour l'obtenir, nous utilisons l'oscillation du signal total.

En effet, cette oscillation étant due aux interférences dans le jet de génération entre les faisceaux de génération et d'habillage, la mesure de sa phase fournit une référence de phase entre ces deux faisceaux au niveau de ce jet. Or la mesure de la phase de l'oscillation des raies satellites est effectuée par rapport au faisceau d'habillage dans le jet de détection et nous donne donc accès à la phase entre les faisceaux UVX et infrarouge d'habillage dans le second jet. Dinu et al. (2003) ont cependant montré que la phase relative entre faisceaux infrarouge et UVX ne variait pas significativement lors de la propagation entre les deux jets de gaz. De ce fait, nous avons accès à la phase entre les raies satellites et le faisceau de génération. Pour obtenir la phase φ_q des harmoniques successives, il suffit alors de supposer une certaine phase pour la première harmonique observée, et de déduire de cette valeur les phases des ordres suivant par concaténation.

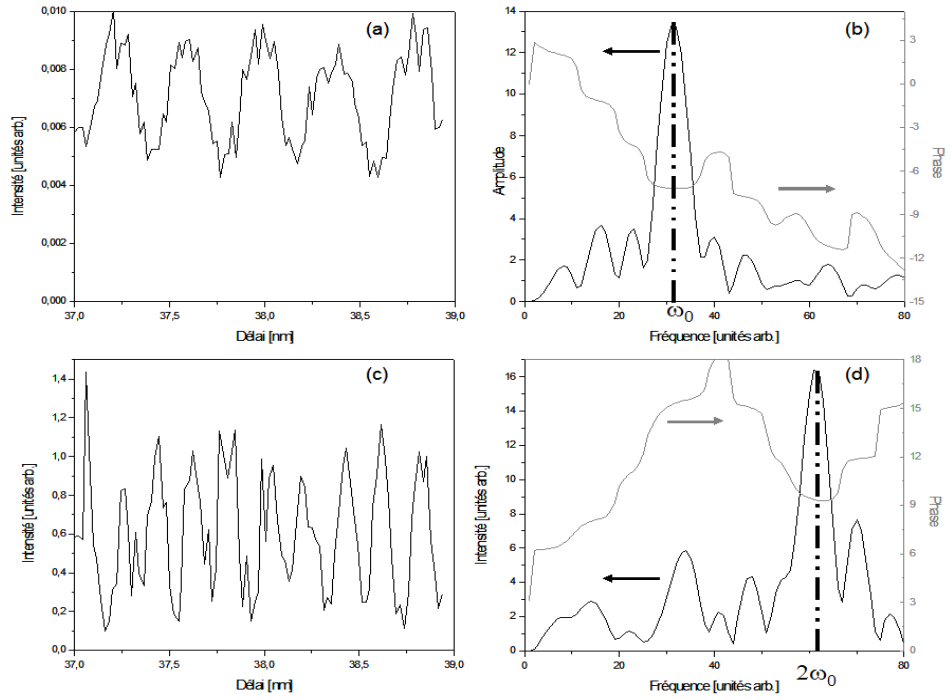


FIG. 5.10: Analyse de la figure 5.9. (a) Evolution du signal total en fonction de la position de la translation piézoélectrique. (b) Module et phase de la transformée de Fourier du signal total. (c) Evolution de l'amplitude de la raie satellite 16. (d) Module et phase de la transformée de Fourier de (c).

5.2.5.2 Quantités extraites

Cette méthode nous donne donc accès aux phases relatives entre les harmoniques consécutives. Les phases ainsi obtenues sont des valeurs moyennes de la phase spectrale de chaque ordre harmonique, définies à une constante près. Il ne s'agit donc pas de phases absolues. Cela entraîne une légère difficulté lors de la comparaison des résultats avec ceux obtenus par les théoriciens. Lorsqu'il présente l'évolution de la phase des harmoniques en fonction de l'orientation des molécules, Lein se place à un ordre donné et fait varier l'angle. En effet, comme ses calculs ne prennent pas en compte les effets de propagation, il lui est impossible d'extraire la phase relative entre les ordres harmoniques successifs. Mairesse et collaborateurs ont proposé une technique permettant d'effectuer ce type de mesure (et qui, en contrepartie, ne permet pas d'obtenir la phase relative entre les ordres harmoniques).

De notre côté, comme nous n'avons pas accès à la phase absolue, il nous est impossible de comparer les phases mesurées pour un ordre harmonique donné en fonction de l'orientation. L'une et l'autre présentation permettent cependant de visualiser le saut de phase.

D'autres techniques ont été proposées afin de mesurer la phase spectrale des harmoniques. Ainsi, le HHG-SPIDER ([Mairesse et al., 2005](#)) qui donne accès à la phase spectrale au sein d'une harmonique donnée mais qui ne permet cependant pas, dans la plupart des cas, de déterminer la phase relative entre les différents ordres. [Mairesse and Quere \(2005\)](#) ont proposé une autre méthode, appelée FROGCRAB, qui permettrait la caractérisation complète de la phase spectrale des harmoniques. Cependant ce type de mesure est impossible à réaliser avec le dispositif expérimental utilisé lors de cette thèse. Un nouveau dispositif est actuellement en cours d'élaboration afin de palier ce problème.

En ce qui concerne l'interprétation de nos résultats expérimentaux, nous avons préféré travailler non pas avec ces valeurs de phases relatives, mais plutôt sur les temps d'émission, définis comme la dérivée de la phase spectrale :

$$t_e(q+1) = \frac{\partial \Phi}{\partial \omega}(q+1) \approx \frac{\varphi_{q+2} - \varphi_q}{2\omega_0} \quad (5.7)$$

où q représente l'ordre harmonique. En effet, la phase des harmoniques est dominée par un terme quadratique qui risque de masquer les évolutions plus fines que nous attendons lors de la génération dans les molécules. De plus, l'obtention des phases se faisant par concaténation, les incertitudes expérimentales s'ajoutent les unes aux autres, contrairement aux temps d'émission, chacun étant directement

issu de la mesure de la phase de l'oscillation d'une raie satellite. Cette quantité permet d'obtenir l'évolution des phases harmoniques, mais donne de plus directement accès à la dynamique électronique, comme nous le verrons plus loin (6.1.2). Succinctement, les temps d'émission représentent l'instant d'émission des différentes harmoniques par rapport au champ infrarouge.

5.2.5.3 Validation de la technique

Comme nous l'avons déjà précisé, l'installation expérimentale de la mesure des phases relatives est très délicate. Nous avons pu néanmoins profiter de l'expertise acquise lors de la thèse de Yann Mairesse (Mairesse, 2005), tant sur le plan expérimental que lors de la validation de nos premières mesures sur les gaz atomiques.

Nous avons effectué les premiers tests en générant des harmoniques dans l'argon. Les temps d'émission mesurés présentent une évolution linéaire en fonction de l'ordre harmonique, comme attendu d'après Mairesse et al. (2003) (Fig. 5.11(a)). Afin de comparer plus quantitativement nos mesures et celles effectuées lors de campagnes expérimentales précédentes, nous avons utilisé la dérivée seconde de la phase spectrale, appelée Δt_e . Cette valeur représente donc la pente de la courbe des temps d'émission. De plus, le calcul permet de montrer la relation :

$$\Delta t_e \propto \frac{4\omega_0^2}{I_0} \quad (5.8)$$

Nous devrions ainsi observer une variation de Δt_e en fonction de l'éclairement de génération I_0 . La figure 5.11(b) représente l'évolution de Δt_e mesurée pour différents gaz de génération par Yann Mairesse et collaborateurs, ainsi que les valeurs que nous avons pu obtenir dans l'argon, qui sont en parfait accord les unes avec les autres dans la zone d'éclairement pour laquelle il est possible clairement cette quantité.

5.2.5.4 Mesures dans les molécules

Les mesures dans les molécules présentent cependant quelques difficultés supplémentaires. En effet, comme l'efficacité de génération est moins importante dans les gaz moléculaires, le signal de photoélectrons est bien plus faible que dans les gaz atomiques. De ce fait, même si dans une certaine mesure il est possible d'augmenter ce signal en jouant sur les paramètres de la détection (pression du gaz de détection, gain des galettes ...), le rapport signal sur bruit est plus faible. Il est

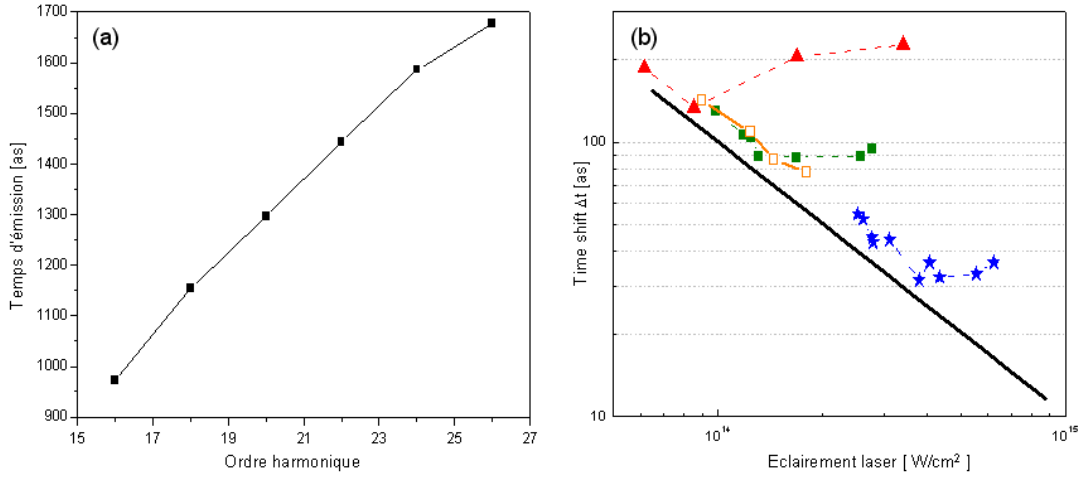


FIG. 5.11: (a) Temps d'émission mesurés dans l'argon pour un éclairement de $0.9 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. (b) Dérive de fréquence attoseconde Δt_e en fonction de l'éclairement laser. Valeurs théoriques (ligne noire), mesures dans le xénon (triangles), l'argon (carrés) et le néon (étoiles) extraites de [Mairesse et al. \(2003\)](#). Mesures dans l'argon (carrés creux) lors de la présente campagne expérimentale.

donc plus difficile d'extraire la phase de l'oscillation des raies satellites que dans le cas atomique.

Chapitre 6

Génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les molécules alignées

Nous avons vu au chapitre 4 comment l'étude de la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les molécules pouvait apporter différents types d'informations sur les propriétés de ces molécules. Dans un premier temps, nous avons choisi d'étudier ces propriétés statiques, pour nous intéresser par la suite, une fois la maîtrise des techniques de caractérisation acquises, aux études dynamiques. Après avoir présenté les moyens expérimentaux mis en oeuvre, tant au niveau de la génération que de la détection, ainsi que les différents types de mesures que nous avons réalisées, nous présenterons comment nous avons cherché à vérifier le modèle théorique à deux centres émetteurs dans deux molécules de symétries différentes, le dioxyde de carbone et l'azote. Nous verrons en parallèle comment la mesure des phases relatives des harmoniques nous permet de visualiser la dynamique attoseconde dans les molécules en champ fort.

6.1 Mesure de phase dans les molécules alignées

Pour cette première série d'expériences, nous avons étudié la dépendance de la génération d'harmoniques en amplitude et en phase dans le dioxyde de carbone et l'azote en fonction de l'angle d'orientation des molécules. Nous avons choisi ces molécules pour leur simplicité. Il s'agit de deux molécules linéaires à deux centres, et faciles à obtenir et à manipuler. Dans un premier temps, en comparant les amplitudes obtenues à 0° et à 90° , nous montrerons que ces deux molécules présentent des comportements bien différents, s'accordant plus ou moins bien

avec le modèle d'interférences présenté précédemment. Puis dans un deuxième temps nous étudierons comment la mesure des phases relatives nous permet de visualiser la dynamique électronique lors de la génération d'harmoniques dans ces molécules.

6.1.1 Effet de l'alignement sur les propriétés de la génération d'harmoniques

6.1.1.1 Effet sur l'amplitude

- *Cas de CO_2*

Comme nous l'avons vu Fig. 5.7, la distribution angulaire des molécules influe fortement sur le spectre harmonique. Les harmoniques les plus basses ne sont que très peu affectées par l'angle entre molécules et champ laser, puis la modulation augmente en amplitude lorsque l'on se rapproche de l'ordre 25, pour diminuer à nouveau lorsque l'ordre harmonique considéré dépasse 29. Différents effets rentrent en compétition pour expliquer cette évolution : le taux d'ionisation dépend de l'orientation (Litvinyuk et al., 2003), favorisant plus ou moins la première étape de la génération d'harmonique, et pour certains ordres harmoniques les interférences quantiques destructives au moment de la recombinaison peuvent influencer sur l'efficacité de la génération. Ces deux influences sont d'ailleurs opposées dans le cas du dioxyde de carbone (Kanai et al., 2005). Lorsque les molécules sont alignées parallèlement au champ de génération, l'ionisation est favorisée, mais on voit Fig. 5.7 que le signal diminue : l'effet d'interférence l'emporte. De même, lorsque les molécules sont antialignées, c'est à dire alignées dans le plan perpendiculaire au champ d'alignement, et donc dans ce cas précis perpendiculaire au champ de génération, l'ionisation est défavorisée mais le signal est maximal. En effet, lorsque les molécules ne sont pas alignées, toutes les orientations sont présentes, et l'effet d'interférence destructive se produit pour de nombreux ordres. De ce fait, le signal total est inférieur au signal observé lorsque les interférences sont interdites. On peut remarquer qu'alignement et antialignement ne sont pas équivalents. La figure 6.1 illustre cela dans le cas de l'harmonique 25 générée dans CO_2 . L'augmentation du signal est supérieure dans le cas où les molécules sont antialignées par rapport au faisceau de génération que lorsqu'elles sont alignées perpendiculairement. En effet, le nombre de molécules effectivement perpendiculaires est plus élevé dans le second cas que dans le premier. De même, la diminution du signal est plus importante lorsque les molécules sont alignées

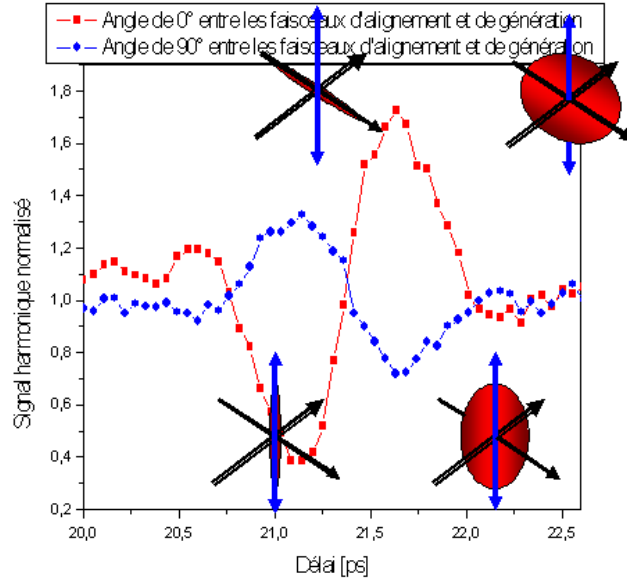


FIG. 6.1: Evolution de l'harmonique 25 générée dans CO_2 en fonction du délai entre faisceaux d'alignement et de génération. Dans un cas les polarisations des deux faisceaux sont parallèles (carrés), dans l'autre ils sont perpendiculaires (cercles). Le délai 21.2 ps correspond au premier réalignment des molécules (half revival). Le délai 21.7 ps correspond à l'antialignment. Les distributions angulaires pour ces deux délais sont schématisés pour les 2 angles d'alignement (la flèche verticale représente la polarisation du laser de génération, la flèche double sa direction de propagation).

parallèlement au faisceau de génération que lorsqu'elles sont dans le plan vertical contenant l'axe de propagation des deux faisceaux, car dans ce dernier cas peu de molécules sont parallèles au faisceau de génération.

Pour étudier plus en détails l'effet de l'orientation des molécules, nous avons fixé le délai entre faisceaux d'alignement et de génération au temps de première remise en phase (half revival, $t = 21.3$ ps dans le cas du CO_2 ; $t = 4.2$ ps dans le cas de N_2), puis nous avons fait varier l'angle des molécules en utilisant la lame demi-onde. La figure 6.2(a) présente l'évolution des spectres générés dans CO_2 pour différentes orientations. La comparaison entre les spectres obtenus pour un alignement parallèle (carrés rouges) et dans le cas non aligné (cercles verts) illustre l'effet d'interférences destructives : le spectre aligné montre la présence d'un minimum de signal centré sur l'harmonique 25, en accord avec la valeur théorique. Une normalisation des spectres obtenus pour un panel d'angles allant de 0° à 90° par le spectre généré dans le CO_2 non aligné permet de mettre l'effet

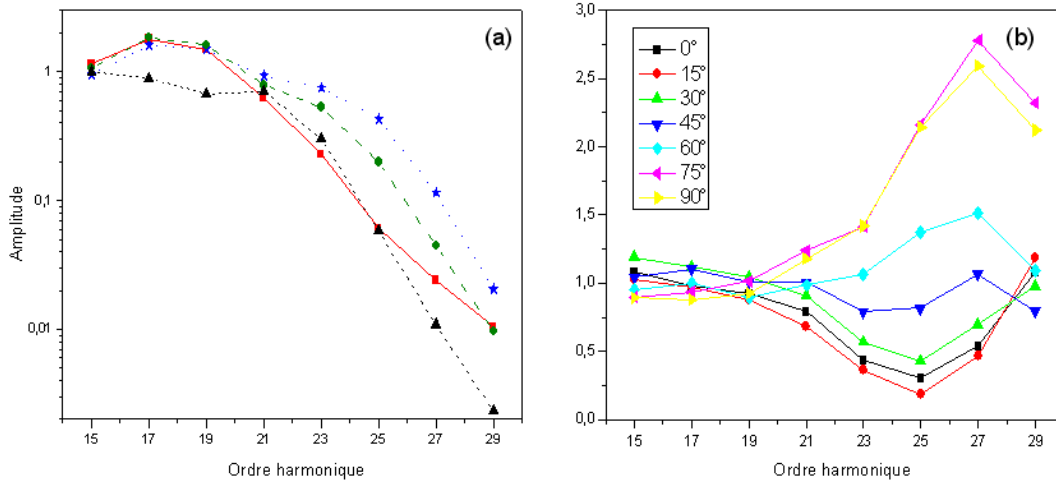


FIG. 6.2: Spectres générés dans CO_2 en fonction de l'angle d'alignement à $I_{\text{génération}} = 0.9 \cdot 10^{14} W/cm^2$ (a) Spectres générés dans CO_2 aligné à 0° (carrés), 90° (étoiles), non aligné (cercles) et dans le krypton (triangles). (b) Spectres normalisés par le spectre généré dans CO_2 non aligné.

de l'orientation en valeur : pour les valeurs faibles, la figure 6.2(b) présente un clair minimum autour de H25, minimum qui disparaît lorsque l'angle se rapproche de 90° .

- Cas de N_2

Les spectres générés dans l'azote ont un comportement différent de ceux obtenus par la génération dans le dioxyde de carbone. Pour un délai entre faisceaux d'alignement et de génération égal à 4.2 ps, pour lequel les molécules sont parallèles au champ de génération, le signal est maximal, et il est minimal lorsque les molécules sont antialignées (Fig. 6.3). Dans le cas de l'azote, l'efficacité de la génération d'harmoniques suit l'évolution du taux d'ionisation avec l'orientation : l'ionisation étant favorisée lorsque les molécules sont parallèles au champ laser, la génération d'harmoniques s'en trouve elle aussi augmentée (Kanai et al., 2005). Cela ne signifie cependant pas que l'effet d'interférences destructives n'a pas lieu, simplement qu'il n'est pas suffisamment important pour compenser l'augmentation du taux d'ionisation. En effet, la figure 6.4(a) présente quelques spectres obtenus dans l'azote pour différentes orientations. En y comparant les différents spectres obtenus dans l'azote par rapport à celui généré dans l'argon, on aperçoit un léger minimum centré autour de l'ordre 25. Une deuxième différence apparaît avec le dioxyde de carbone : ce minimum est présent quelle que soit l'orientation

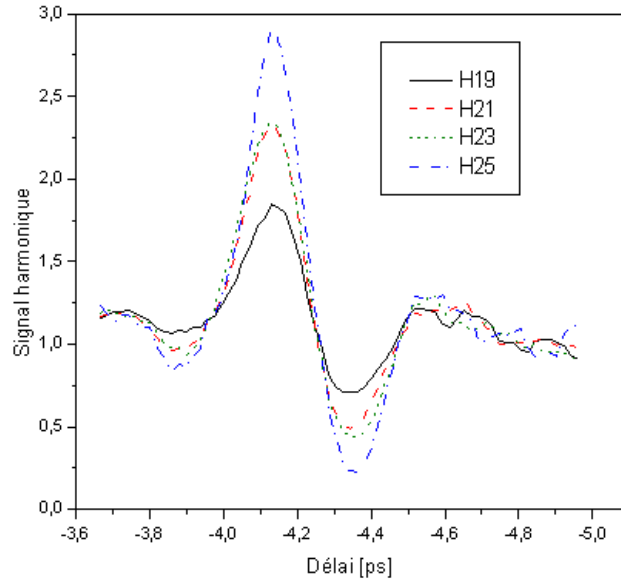


FIG. 6.3: Evolution des amplitudes des harmoniques 19 à 25 générées dans N_2 autour du délai de première remise en phase.

de la molécule. Après normalisation des spectres par le cas N_2 non aligné, ce qui devait mettre en valeur le minimum dû aux interférences ne montre en réalité que des courbes parallèles (Fig. 6.4(b)). Bien que l'angle des molécules ait une influence sur l'efficacité de génération, cela modifie les spectres dans leur ensemble (en changeant leurs amplitudes) mais ne fait pas apparaître de structure. Une seconde normalisation est possible : plutôt que d'utiliser l'azote non aligné, on peut normaliser par l'argon. La figure 6.4(c) met alors bien en valeur un minimum d'efficacité de génération centré sur l'harmonique 25, indépendant de l'orientation de la molécule.

La simple mesure des spectres harmoniques générés dans CO_2 et N_2 fait donc apparaître l'effet des interférences quantiques prévues au paragraphe 4.2.2. Cependant, ces deux molécules ont un comportement totalement différent. Dans le cas du dioxyde de carbone, on observe une variation des interférences, qui sont maximales lorsque les molécules sont alignées parallèlement à la polarisation du faisceau de génération et minimales pour un alignement perpendiculaire. Par contre, la génération d'harmoniques dans l'azote ne présente pas cette dépendance en fonction de l'orientation : les interférences sont identiques pour toutes les directions d'alignement.

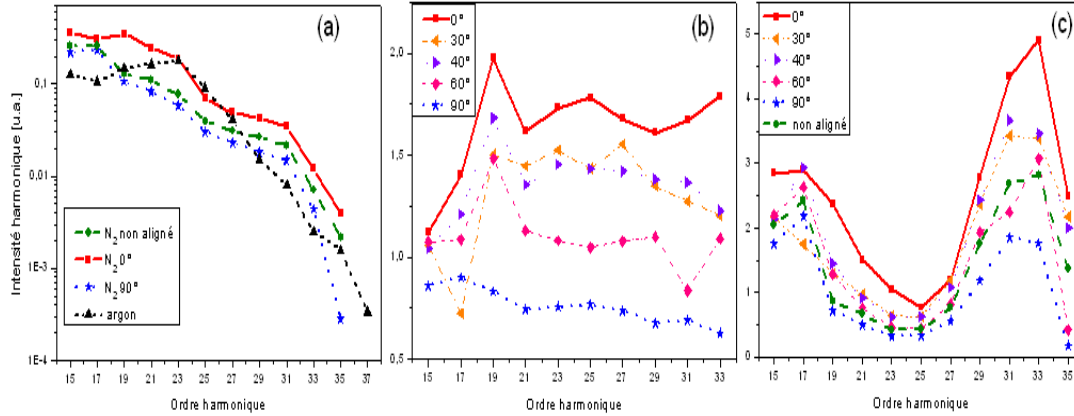


FIG. 6.4: Spectres générés dans N_2 en fonction de l'alignement à $I_{\text{génération}} = 1.5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (a) Spectres générés dans N_2 aligné à 0° (carrés), 90° (étoiles), non aligné (cercles) et dans l'argon (triangles). (b) Spectres normalisés par le spectre généré dans N_2 non aligné. (c) Spectres normalisés par le spectre généré dans l'argon.

6.1.1.2 Effet sur la phase spectrale

Les calculs effectués dans le cadre du modèle à deux centres émetteur sur la génération d'harmoniques dans H_2 et dans H_2^+ (Lein et al., 2002a,b) montrent qu'à la position des interférences destructives la phase spectrale des harmoniques présente un saut de π radians environ (Fig. 6.5). La mesure expérimentale de ce saut de phase nous permettra de mettre en évidence de façon définitive un effet d'interférences destructives lors de la recombinaison du paquet d'ondes électroniques avec l'orbitale moléculaire.

• Cas de CO_2

La figure 6.6(a) présente la mesure des temps d'émission dans le dioxyde de carbone et dans le krypton. Ce dernier présente les caractéristiques détaillées dans Mairesse et al. (2003) et Mairesse et al. (2004) : dans le plateau (raies satellites 16 à 24) l'évolution des temps d'émission est linéaire, puis dans la coupure (à partir de l'ordre 26) on observe une saturation. Dans le cas de la génération dans CO_2 non aligné (cercles), la différence est faible. Par contre, le CO_2 aligné parallèlement au champ de génération a un comportement bien différent. Les ordres faibles et les plus élevés sont semblables au cas atomique. Mais à partir de l'ordre 22, on aperçoit un changement de la pente, puis un retour vers les valeurs obtenues dans le krypton. Ceci est la signature d'un saut de phase, comme on peut le voir sur la figure 6.6(b). Ce saut est non pas brutal et localisé sur un ordre donné mais étalé,

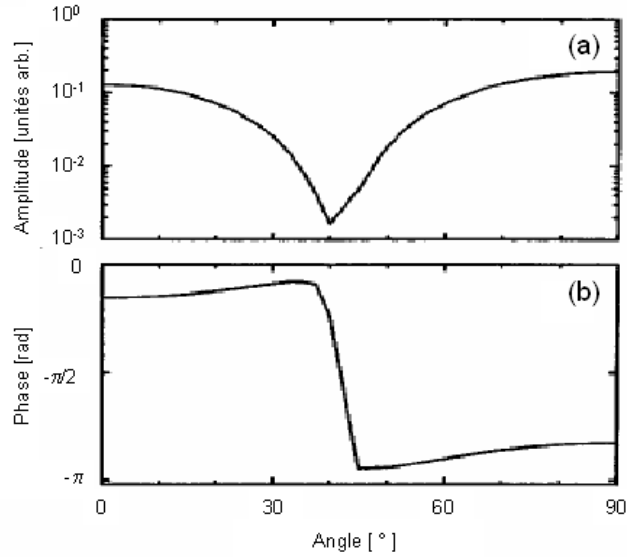


FIG. 6.5: (a) Amplitude et (b) phase de l'harmonique 43 générée dans H_2^+ en fonction de l'angle entre la polarisation du champ d'alignement et la molécule. Calcul 2D extrait de [Lein et al. \(2002a\)](#).

ici sur 3 ordres. Néanmoins, le saut de phase observé est centré sur l'harmonique 23, en accord avec les mesures spectrales (Fig. 6.2). De plus, lorsque les molécules sont alignées perpendiculairement au champ de génération (étoiles), ce saut de phase disparaît, tout comme le minimum d'amplitude disparaissait figure 6.2. Il est possible d'évaluer la valeur du saut de phase à partir des mesures de temps d'émission. En effet, les temps d'émission sont définis comme $t_e = \partial\varphi/\partial\omega$. La différence entre les intégrales des temps d'émission de CO_2 et du krypton (la zone hachurée sur la figure 6.6) donne donc la différence de phase entre les deux cas, soit donc le saut de phase. Pour cette mesure, nous avons obtenu un saut de phase de 2.4 radians.

Une étude plus détaillée de l'évolution des temps d'émission en fonction de l'angle montre un comportement qui semble être différent de la prédiction du modèle à deux centres émetteurs. Celui-ci prédit que la position des interférences doit se déplacer vers les ordres élevés lorsque l'angle se rapproche de 90°. Nous avons effectué cette étude tous les 10°, entre -90° et 90°, et nous avons obtenu un résultat un peu différent, présenté figure 6.7 pour quelques angles seulement. On voit que le début du saut de phase a toujours lieu au même ordre, mais la pente des temps d'émission diminue lorsque l'angle augmente pour passer de 0° à 90°. Nous interprétons cela comme étant dû à un étalement du saut sur un nombre toujours plus important d'ordres harmoniques, au fur et à mesure que l'ordre

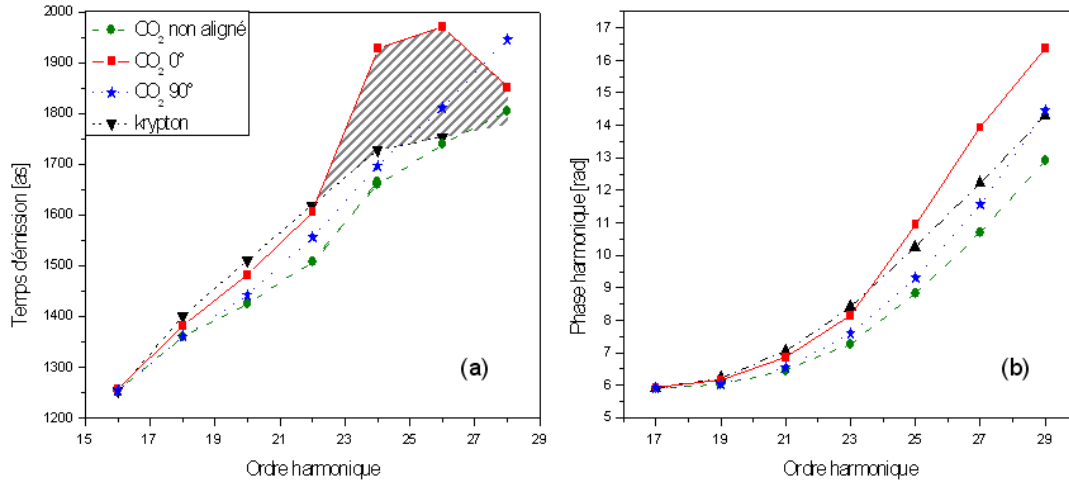


FIG. 6.6: (a) Temps d'émission mesurés dans le CO_2 aligné à 0° (carrés), 90° (étoiles), non aligné (cercles) et dans le krypton (triangles). La zone hachurée correspond à la mesure du saut de phase. (b) Reconstruction des phases relatives à partir des temps d'émission, avec les mêmes conventions qu'au (a). Dans les deux cas, $I_{\text{génération}} = 1.6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

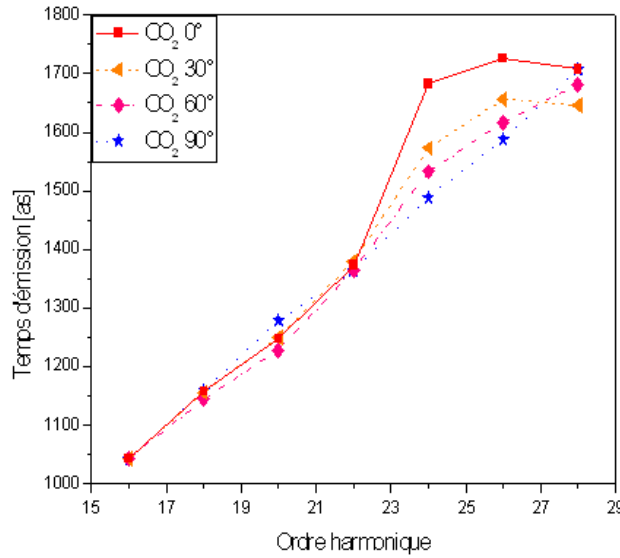


FIG. 6.7: Temps d'émission pour différentes orientations de CO_2 (carrés : 0° , triangles : 30° , losanges : 60° , étoiles : 90°).

central du saut augmente (Wabnitz et al., 2006).

- Cas de N_2

Figure 6.8, la courbe des temps d'émission dans N_2 aligné à 0° présente un brusque changement de pente à l'ordre 24 associé à des interférences. Cela correspond à un saut de phase étalé des ordres 23 à 31. Bien que dans nos conditions expérimentales nous ne soyons pas capables d'observer la totalité du saut (les courbes des temps d'émission de l'argon et de l'azote ne se rejoignent pas aux ordres élevés), on peut évaluer la partie visible du saut à 1.9 radians. La principale différence entre les deux gaz étudiés tient en leur variation avec l'orientation des molécules. Comme on peut le voir figure 6.8, lorsque l'on aligne N_2 à 90° , le saut de phase ne disparaît pas, il reste même identique à celui observé à 0° . Cela explique les observations de Wabnitz et al. (2006). Au cours de cette expérience, nous voulions observer le saut de phase dans l'azote non aligné, en utilisant un dispositif expérimental légèrement différent mais la même technique de mesure, le gaz de détection utilisé étant l'argon et non pas le néon. Nous n'avions donc pas accès aux ordres supérieurs à 23 (Fig. 5.6). Néanmoins, nous avons observé le début du saut, ceci bien que les molécules ne soient pas alignées. Nous avons pu confirmer cela avec notre nouveau dispositif (Fig. 6.8, cercles). En effet, des mesures effectuées à différents angles compris entre -90° et 90° montrent que le saut de phase ne varie jamais avec l'orientation. De ce fait, lorsque l'azote n'est pas aligné, c'est à dire lorsque toutes les orientations sont présentes, le rayonnement harmonique total étant la somme des rayonnements émis par chacune des orientations, le saut de phase reste inchangé.

Nous avons donc mis en évidence la présence d'un saut de phase à la position des interférences destructives. Ce saut de phase est étalé sur plusieurs ordres harmoniques et non pas localisé à un ordre précis comme prévu par le calcul, ce que nous attribuons au fait que les molécules ne sont en réalité pas toutes alignées dans une direction précise mais orientées selon une certaine distribution angulaire. De plus, nous avons mis en évidence une différence de comportement entre les deux molécules étudiées, le dioxyde de carbone et l'azote. Pour cette dernière, on observe le même comportement quelle que soit l'orientation des molécules par rapport à la polarisation du laser de génération.

6.1.2 Observation de la dynamique électronique attoseconde dans les molécules

La mesure des phases spectrales permet la visualisation de la dynamique attoseconde des électrons lors du processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé. La résolution de l'équation classique de propagation d'un électron dans le champ

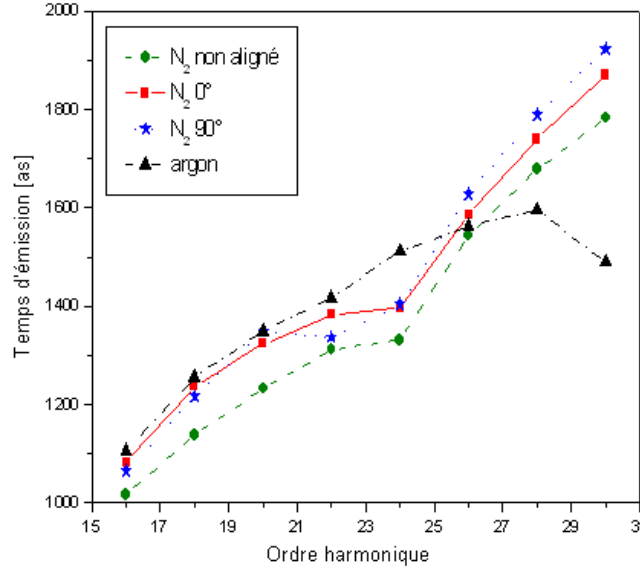


FIG. 6.8: Temps d'émission mesurés dans N_2 aligné à 0° (carrés), 90° (étoiles), non aligné (cercles) et dans l'argon (triangles). $I_{\text{génération}} = 1.6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

laser montre que les électrons responsables de la génération d'harmoniques sont ionisés à des instants successifs, suivent une trajectoire plus ou moins longue dans le continuum, puis se recombinent avec le noyau à des instants, que l'on appelle instants d'émission t_e différents en fonction de leur énergie cinétique. De ce fait, les différents ordres harmoniques sont émis à des instants différents. On sait que deux principales familles de trajectoires quantiques donnent naissance aux harmoniques. Expérimentalement, nous avons sélectionné la trajectoire dite courte, en focalisant le faisceau de génération juste avant le jet moléculaire (Salières et al., 2001). La mesure de la phase spectrale nous permet alors d'étudier la synchronisation des harmoniques (Mairesse et al., 2003). Il est en effet possible de reconstruire les trains d'impulsions attosecondes à partir non pas de l'ensemble du spectre mesuré mais en prenant en compte des groupes d'harmoniques successives (Fig. 6.9). Les impulsions obtenues à partir des harmoniques les plus basses sont émises avant les autres, avec un délai par rapport au champ infrarouge (la courbe en pointillés) de 1500 as environ. Pour chacune des courbes, on peut relier ce délai au temps d'émission moyen du groupe d'harmoniques pris en compte. De ce fait, la mesure des temps d'émission, que l'on obtient directement des mesures RABITT (à la correction de la phase atomique près, très faible cependant), permet d'étudier directement la dynamique de l'émission.

Nous avons utilisé la même méthode pour étudier la dynamique électronique dans

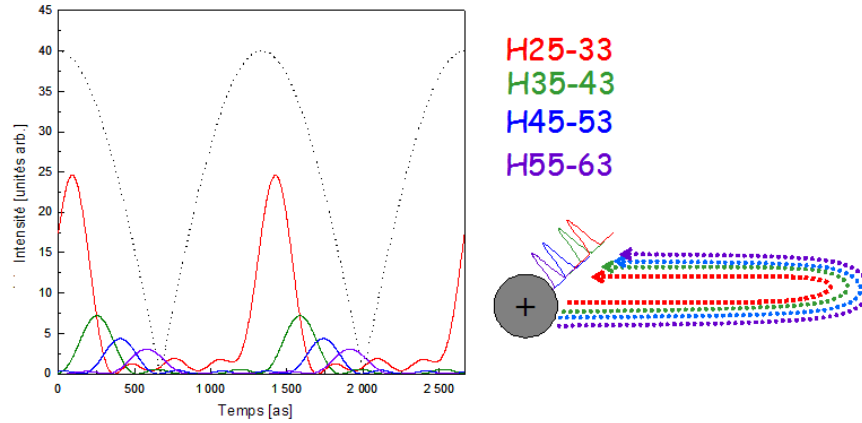


FIG. 6.9: Profil temporel de l'émission harmonique dans le néon. Les différentes courbes correspondent à une reconstruction prenant en compte un certain groupe de 5 harmoniques consécutives (rouge : H25-33, vert : H35-43, bleu : H45-53, violet : H55-63). La courbe en pointillés représente la valeur absolue de l'amplitude champ infrarouge. Sur la droite sont schématisées les différentes trajectoires électroniques partant et revenant au noyau atomique.

les molécules. Dans un premier temps, nous nous sommes intéressés aux impulsions attosecondes obtenues en prenant en compte la totalité du spectre (Wabnitz et al., 2006). Les trains d'impulsions que nous avons obtenus dans l'azote et l'argon sont très semblables, et ce pour deux raisons : tout d'abord nous ne pouvions observer que le début du saut de phase. Ensuite, et cela concerne aussi les mesures plus récentes, le saut de phase est situé principalement dans la coupure. De ce fait, l'amplitude des harmoniques du saut est faible, et ces ordres n'ont que peu d'influence sur les trains d'impulsions. Pour ces raisons, nous avons décidé d'effectuer deux reconstructions temporelles : en prenant en compte les ordres faibles, situés avant le saut de phase, puis en prenant en compte uniquement les ordres élevés, incluant le saut de phase.

Tout d'abord, intéressons nous à l'effet d'un saut de phase de π sur le profil temporel de l'émission. La figure 6.10 résume les conséquences d'un tel saut en prenant l'exemple de quelques cas très simples. Pour ces calculs, nous avons considéré un spectre constant, d'amplitude égale à 1 (Fig. 6.10(a)). Nous comparons trois phases spectrales différentes : une phase constante (carrés), une phase présentant un saut de π localisé sur l'ordre 23 (triangles) et une phase avec un saut de π étalé entre les ordres 23 et 29 (Fig. 6.10(b)). La reconstruction de l'émission dans le domaine temporel des harmoniques 15 à 21 donne la même chose dans les trois cas, les caractéristiques spectrales de nos trois exemples étant identiques dans ce

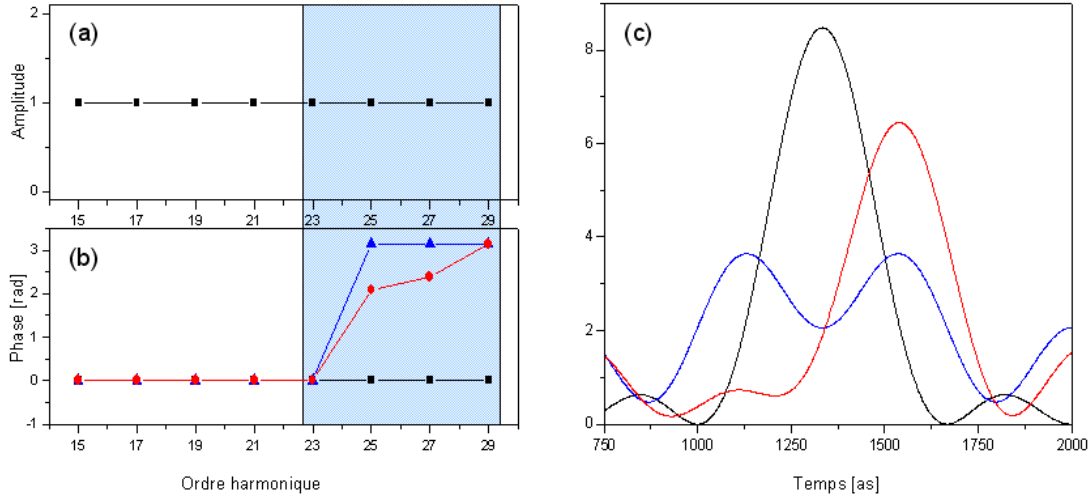


FIG. 6.10: Visualisation de l'effet d'un saut de phase de π sur les impulsions attosecondes. (a) Amplitude des harmoniques. (b) Phase des harmoniques (carré : phase constante, triangles : saut de phase brutal à l'harmonique 23, cercles : saut de phase étalé des harmoniques 23 à 29). La zone colorée correspond aux ordres harmoniques pris en compte pour le calcul des impulsions temporelles. (c) Reconstruction des impulsions attosecondes (noir : phase spectrale constante, bleu : saut de phase brutal, rouge : saut de phase étalé).

domaine. Il en est autrement des harmoniques contenant le saut de phase (Fig. 6.10(c)). La courbe noire correspond au cas parfait, c'est donc un train d'impulsions limitées par transformée de Fourier. Si on prend en compte un saut de π brutal (courbe bleue), on observe que l'impulsion se dédouble : des interférences destructives la creusent en son centre, et elle s'élargit (si notre saut de phase était situé au centre de notre bande spectrale, on obtiendrait dans le domaine temporel deux impulsions parfaitement distinctes). Dans le cas d'un saut étalé sur plusieurs ordres, l'impulsion obtenue est retardée par rapport au cas idéal. De plus, on aperçoit l'apparition d'une petite pré-impulsion. Dans ces simulations deux éléments importants de la génération d'harmoniques ont été négligés : le fait que l'amplitude des harmoniques du saut soit très faible du fait de leur appartenance à la zone de la coupure, et la dérive de fréquence intrinsèque au mécanisme de la génération d'harmonique.

Nous avons ensuite effectué cette même reconstruction à partir des amplitudes et des phases harmoniques que nous avons mesurées dans les quatre gaz étudiés. Dans le cas du dioxyde de carbone, le saut de phase commençant à l'harmonique 23, nous avons séparé le spectre en deux parties : de l'harmonique 15 à l'har-

monique 21, puis de l'harmonique 23 à l'harmonique 29 (Fig. 6.11(a)). Les deux trains d'impulsions générés dans le krypton sont décalés l'un par rapport à l'autre d'une durée de 350 as environ. Ce délai est le reflet de la dynamique électronique lors des deux premières étapes de la génération d'harmoniques, l'ionisation tunnel et l'accélération dans le continuum, comme nous l'avons déjà mentionné (c'est la signature temporelle du chirp atto). Le cas des molécules de CO_2 alignées à 0° est plus intéressant. En plus d'un décalage identique à celui observé dans le krypton, l'impulsion provenant des ordres contenant le saut de phase présente un retard supplémentaire de 250 as environ, valeur qui correspond à celle trouvée par le calcul simple de la figure 6.10. De plus, on constate la présence d'une pré-impulsion juste avant l'impulsion principale. Malgré les réserves émises plus haut sur la simplicité du calcul "idéal", il semble donc que ses conclusions soient vérifiées dans la pratique. Enfin, lorsque l'on aligne le CO_2 à 90° , ce délai supplémentaire disparaît : on retrouve uniquement le délai dû à la dynamique électronique des premières étapes.

La figure 6.11(b) représente quant à elle les résultats obtenus dans l'azote et l'argon. Comme le saut de phase commence ici à l'ordre 25, les deux groupes d'harmoniques utilisés sont : H17 à H23 et H25 à H31. Dans le cas de l'azote aligné à 0° , on retrouve le décalage temporel entre les deux trains d'impulsions dû à la fois à la dérive de fréquence intrinsèque au processus de génération et aux interférences destructives. Par contre, lorsque les molécules sont tournées de 90° , les impulsions de haute énergie restent synchronisées avec celles générées à 0° , contrairement à ce qui se passe avec le CO_2 . On retrouve le fait que l'effet d'interférence dans l'azote n'est pas dépendant de l'orientation.

Quel est l'effet de l'orientation des molécules par rapport au champ laser sur la dynamique électronique ? Dans un premier temps, nous reprenons le calcul simplifié de la figure 6.10. L'amplitude des harmoniques est maintenue constante pour tous les ordres. La phase est fixée égale à zéro avant le saut de phase (nous négligeons la dérive de fréquence atto). Le saut de phase est étalé sur plusieurs ordres harmoniques, et est calculé d'après la figure 6.7. La figure 6.12 montre alors que lorsque l'angle des molécules augmente, les impulsions attosecondes sont de moins en moins retardées par rapport au cas où le saut de phase est absent. Afin d'étudier l'évolution de ce retard en fonction de l'orientation lors de la génération d'harmoniques dans CO_2 et N_2 , nous définissons un délai Δt comme étant égal à la différence entre les instants des maxima des impulsions obtenues avec les harmoniques basses et celles générées par les harmoniques du saut de phase. Dans le cas des gaz rares, krypton et argon, Δt est le reflet des deux premières étapes du mécanisme de génération. Aux éclaircissements considérés,

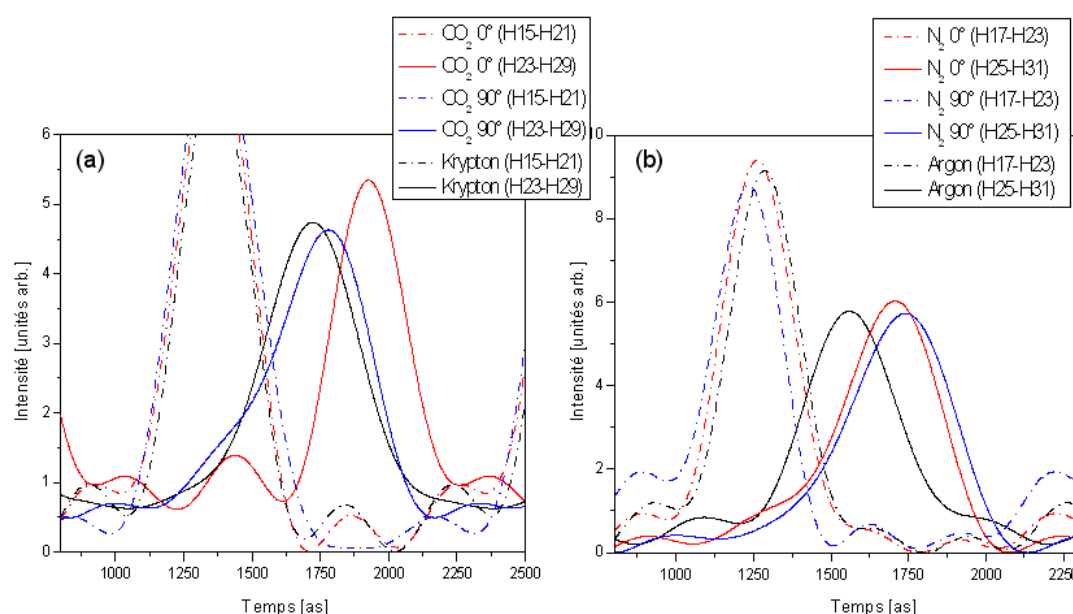


FIG. 6.11: Profil temporel de l'émission harmonique dans CO_2 (a) et N_2 (b). Pointillés : émission des harmoniques avant le saut (H15 à 21 pour (a), H17 à 23 pour (b)). Traits pleins : émission des harmoniques du saut (H23 à 29 pour (a), H25 à 31 pour (b)).

Sur les courbes rouges, les molécules sont alignées parallèlement à la polarisation du champ laser de génération, perpendiculairement pour les courbes bleues. Les courbes noires représentent les gaz rares partenaires (krypton (a) et argon (b)).

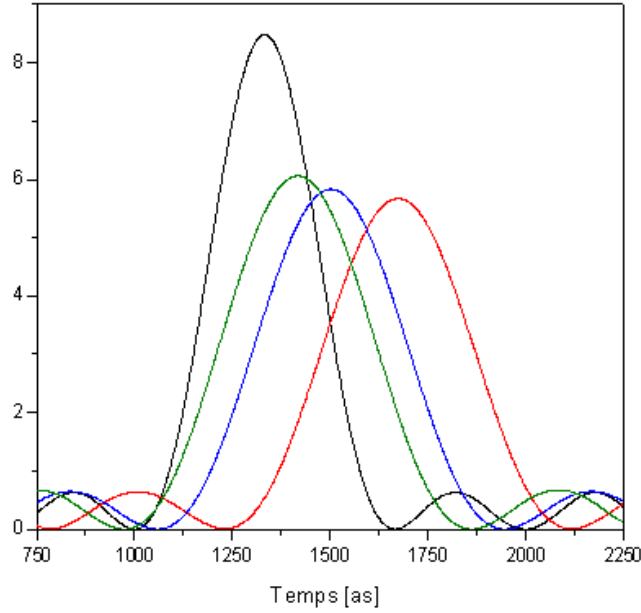


FIG. 6.12: Reconstruction des impulsions attosecondes en fonction de l'orientation des molécules. Pour ces calculs, l'amplitude et la phase des harmoniques sont semblables à la figure 6.10. L'évolution du saut de phase est calculée d'après les mesures de la figure 6.7. Noir : sans saut de phase (90°), rouge : 0° , bleu : 30° , vert : 60° .

ainsi que pour les groupes de 4 harmoniques que nous utilisons, $\Delta t_{\text{krypton}} \approx \Delta t_{\text{argon}} \approx 350$ as. Nous avons effectué des mesures tous les 10° . La figure 6.13 présente l'évolution de Δt en fonction de l'angle, pour CO_2 (a) et N_2 (b). Les deux lignes pointillées correspondent respectivement au krypton et à l'argon. Ces deux valeurs sont légèrement différentes car ces deux mesures ont été prises à des éclairagements sensiblement différents. Dans le cas du CO_2 , le délai supplémentaire varie de 150 as environ à 0° à 0 as lorsque les molécules sont perpendiculaires à la polarisation du champ de génération. L'effet de retard des électrons dû aux interférences diminue donc avec l'angle : lorsque les molécules sont alignées à 90° , elles se comportent de ce point de vue comme des atomes. Dans l'azote le comportement est tout autre : Δt_{N_2} reste sensiblement constant quel que soit l'angle d'orientation (Fig. 6.13(b)).

La notion de trajectoire électronique, qui reste une notion classique, n'est dans le cadre de nos études plus applicable. En effet, le phénomène d'interférences est purement quantique. Le retard supplémentaire observé est une conséquence du saut de phase, et ne peut être expliqué par un allongement de la trajectoire des électrons. Nous pouvons cependant, grâce aux mesures des phases relatives,

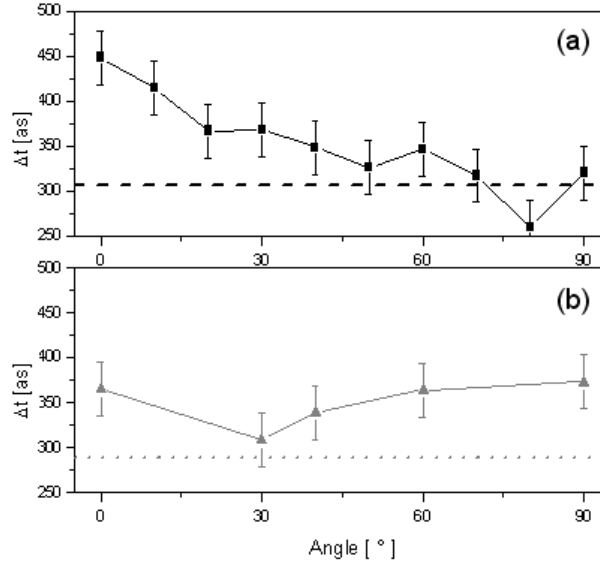


FIG. 6.13: Evolution du Δt en fonction de l'angle dans les différents gaz. Les lignes pointillées correspondent aux gaz rares, krypton en (a) et argon en (b). (a) Δt_{CO_2} . (b) Δt_{N_2} .

étudier la dynamique électronique dans les molécules en champ fort à l'échelle attoseconde. Nous avons montré que, dans les molécules, nous avons accès par ces mesures à deux informations : la dynamique électronique lors des étapes d'ionisation tunnel et d'accélération dans le champ laser, communes aux atomes et aux molécules, et à la dynamique électronique lors de la recombinaison, qui se traduit par un délai dans l'émission des harmoniques du saut, dépendant de l'orientation des molécules dans le cas de CO_2 .

En conclusion, nous avons pu observer sur les spectres harmoniques générés dans N_2 et CO_2 la présence de minima, dus au phénomène d'interférences quantiques lors de l'étape de recombinaison prévu par le modèle à deux centres émetteurs (chapitre 4.2.2). De plus, nous avons mis en évidence la présence d'un saut de phase qui débute à la position du minimum spectral. Ce saut de phase prouve le phénomène d'interférences. Les caractéristiques spectrales de l'émission harmonique dans CO_2 dépendent de l'orientation des molécules par rapport à la polarisation du champ laser de génération. Par contre, ce n'est pas le cas dans l'azote. Il faut noter que dans le cas de l'azote, l'orbitale suivante est très proche de l'état fondamental (1.4 eV), et présente une symétrie différente. Il paraît difficile dans ce cas d'appliquer le modèle à deux centres émetteurs. [Patchkovkii et al. \(2006\)](#) ont d'ailleurs montré que la prise en compte de plusieurs électrons lors du

processus permettait une meilleure reconstruction tomographique de l'orbitale de N_2 .

D'autres modèles proposent de traiter l'étape d'ionisation tunnel de façon plus complexe, permettant ainsi de prendre en compte le premier état excité. Ainsi, selon [Xie et al. \(2007\)](#), il est nécessaire de tenir compte des dynamiques internes de la molécule induites par le champ laser lors du processus d'ionisation. Ils observent alors un profil temporel de l'émission harmonique aux énergies proches de la coupure plus ou moins retardée en fonction de l'orientation des molécules. De plus, les effets dynamiques au sein des molécules pouvant dépendre de l'éclairement laser, l'ionisation tunnel devient alors fonction de cet éclairement, induisant une variation de l'émission harmonique en fonction des paramètres du laser.

6.2 Influence de l'éclairement de génération

6.2.1 Résultats expérimentaux

Nous avons pu expérimentalement observer des variations du saut de phase non prévues par le modèle à deux centres émetteurs. Associées au fait que certains modèles prévoient une influence de l'éclairement de génération sur les propriétés de la génération d'harmoniques dans les molécules ([Le et al., 2006](#); [Xie et al., 2007](#)), ces observations nous ont amenés à étudier de façon systématique l'influence de l'éclairement de génération sur le saut de phase.

- *Cas de N_2*

La figure 6.14(a) représente l'évolution des spectres mesurés dans l'azote en fonction de l'éclairement de génération. Comme dans les atomes, la position de la coupure s'éloigne vers les ordres élevés lorsque cet éclairement augmente, selon la loi

$$\hbar\omega_{max} = I_p + 3.17U_p \quad (6.1)$$

où I_p est le potentiel d'ionisation de l'azote et U_p le potentiel pondéromoteur,

$$U_p = \frac{E^2}{4\omega^2} \quad (6.2)$$

L'azote ayant un potentiel d'ionisation très proche de celui de l'argon, on retrouve en fait la même dépendance en fonction de l'éclairement, comme le montre la figure 6.14(b). Il n'est cependant pas très aisé de reconnaître la position des minima

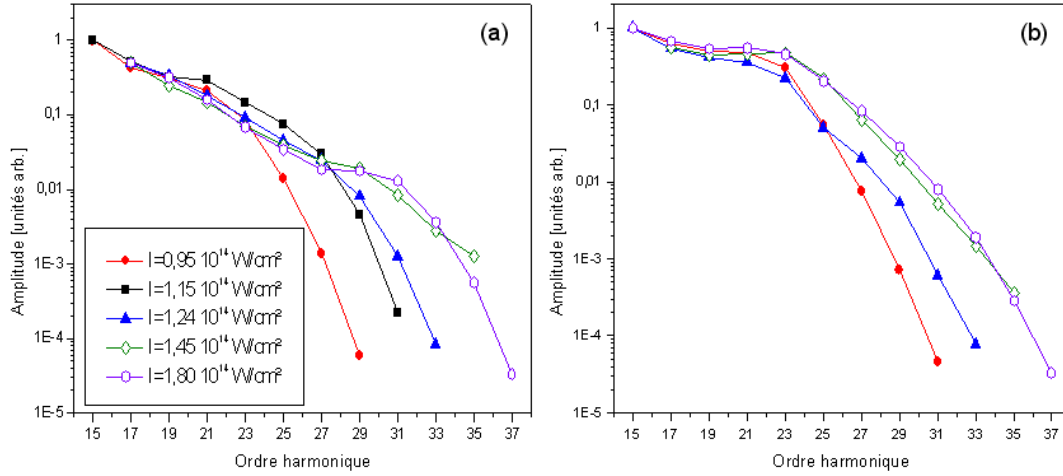


FIG. 6.14: Effet de l'éclairement de génération sur les spectres dans l'azote (a) et l'argon (b).

(cercles rouges : $I = 0.95 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, carrés noirs : $I = 1.15 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, triangles bleus : $I = 1.24 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, losanges verts : $I = 1.45 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, hexagones violets : $I = 1.8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$)

d'interférences sur la courbe (a). Nous avons vu au paragraphe 6.1.1.1 que la normalisation des spectres obtenus dans N_2 par ceux de l'argon permettait de mettre l'effet des interférences en valeur. Si l'on effectue cette normalisation pour différentes valeurs de l'éclairement de génération (Fig. 6.15), on peut voir qu'entre un éclairement proche de $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (cercles rouges) et $1.8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (hexagones violets) la position du minimum d'interférences s'est décalée vers les ordres élevés. Nous n'avons pas pu effectuer de mesure pour des éclairements plus faibles, le signal de photoélectrons devenant alors trop faible, ni pour des éclairements plus importants pour des problèmes liés dans ce cas à l'ionisation du milieu. En effet, si le milieu est trop ionisé, les effets de propagation modifient les phases relatives et entraînent la désynchronisation des harmoniques (Mairesse et al., 2003).

Les temps d'émission présentent la même dépendance avec l'éclairement (Fig. 6.16). Lorsque l'éclairement de génération augmente, le saut de phase se décale vers des ordres de plus en plus élevés. Les figures 6.14(a) et 6.16(a) semblent montrer que la position du saut de phase se situe environ un ordre harmonique avant le début de la coupure. La comparaison entre les temps d'émission mesurés dans l'azote et l'argon montre à nouveau, quel que soit l'éclairement considéré, que le comportement de ces deux gaz est semblable avant le saut de phase. La

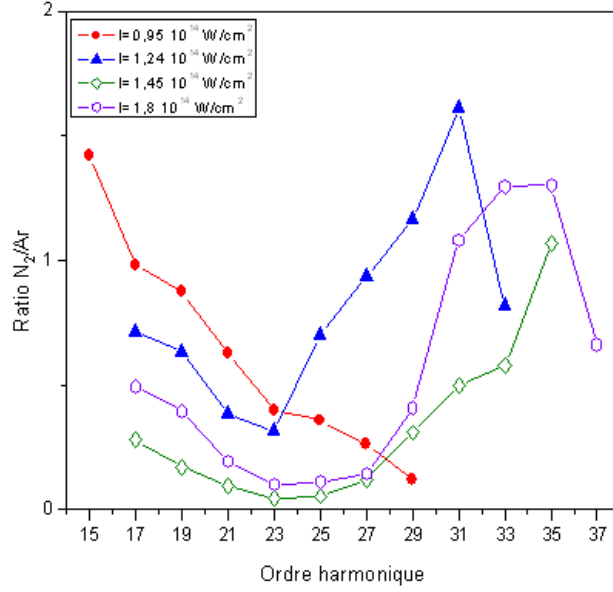


FIG. 6.15: Spectres générés dans l'azote à différents éclaircements de génération normalisés par les spectres générés dans l'argon aux mêmes éclaircements. (cercles rouges : $I = 0.95 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, triangles bleus : $I = 1.24 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, losanges verts : $I = 1.45 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, hexagones violets : $I = 1.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$).

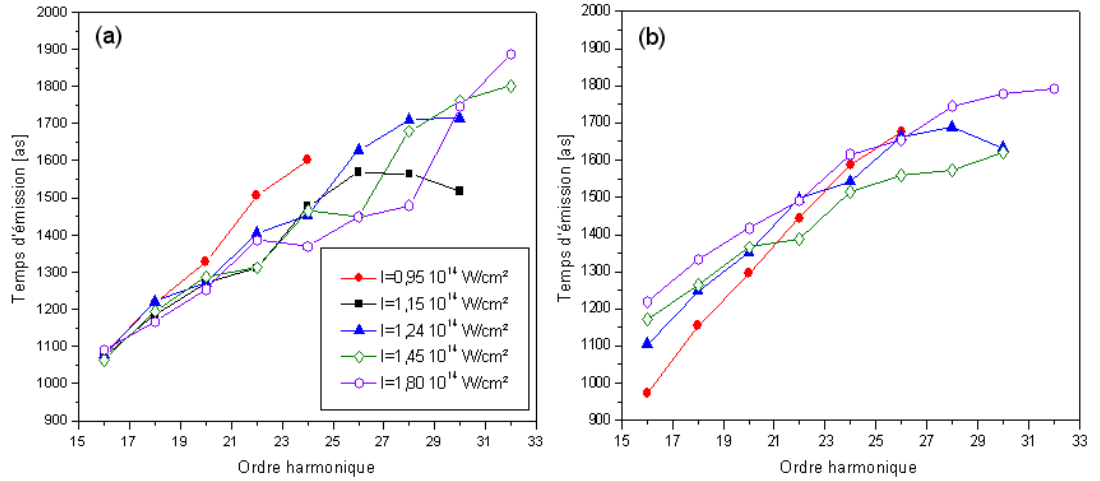


FIG. 6.16: Temps d'émission mesurés (a) dans l'azote et (b) dans l'argon pour différents éclaircements de génération (cercles rouges : $I = 0.95 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, carrés noirs : $I = 1.15 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, triangles bleus : $I = 1.24 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, losanges verts : $I = 1.45 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, hexagones violets : $I = 1.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$).

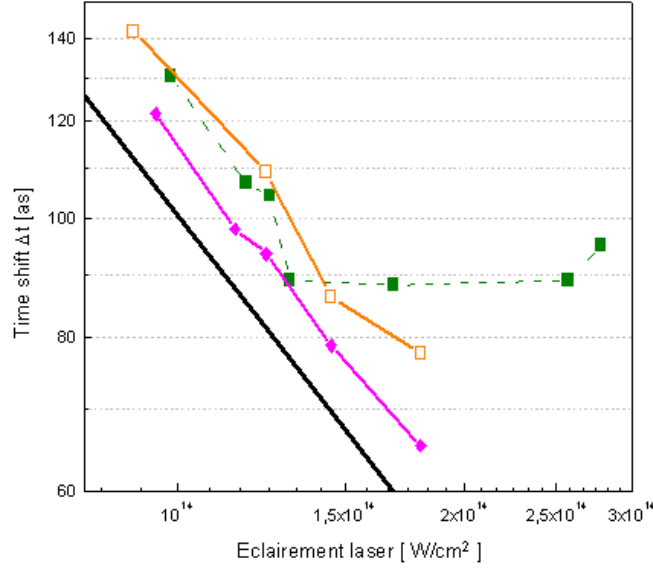


FIG. 6.17: Dérive de fréquence attoseconde Δt_e en fonction de l'éclairement de génération. Valeurs théoriques (ligne noire), mesures dans l'argon (carrés) extraites de [Mairesse et al. \(2003\)](#). Mesures dans l'argon (carrés creux) et l'azote (losanges) lors de la présente campagne expérimentale.

figure 6.17 représente la dérivée seconde de la phase spectrale des harmoniques pour nos mesures dans l'azote ainsi que les valeurs issues de la figure 5.11. Les valeurs obtenues dans le cas de l'argon et de l'azote sont identiques aux erreurs d'estimation de l'éclairement près. Cette observation confirme le fait que la dynamique électronique lors des deux premières étapes du processus de génération d'harmoniques est globalement identique dans les atomes et les molécules. Seule l'étape de recombinaison, lorsque le phénomène d'interférences a lieu, introduit une différence dans les propriétés du rayonnement harmonique. Ces observations valident donc l'hypothèse utilisée par [Itatani et al. \(2004\)](#), bien que les observations sur les dépendances du saut de phase indiquent la nécessité d'aller au delà du modèle à deux centres émetteurs.

- *Cas de CO_2*

L'étude de l'influence de l'éclairement de génération dans le cas où la molécule cible est le CO_2 est plus problématique. En effet, le domaine d'éclairement auquel nous avons accès est plus limité. Ainsi, pour des éclairements de $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ou plus le milieu est trop ionisé et la relation de phase entre les ordres harmoniques disparaît. De plus, lorsque les molécules de CO_2 sont alignées parallèlement au

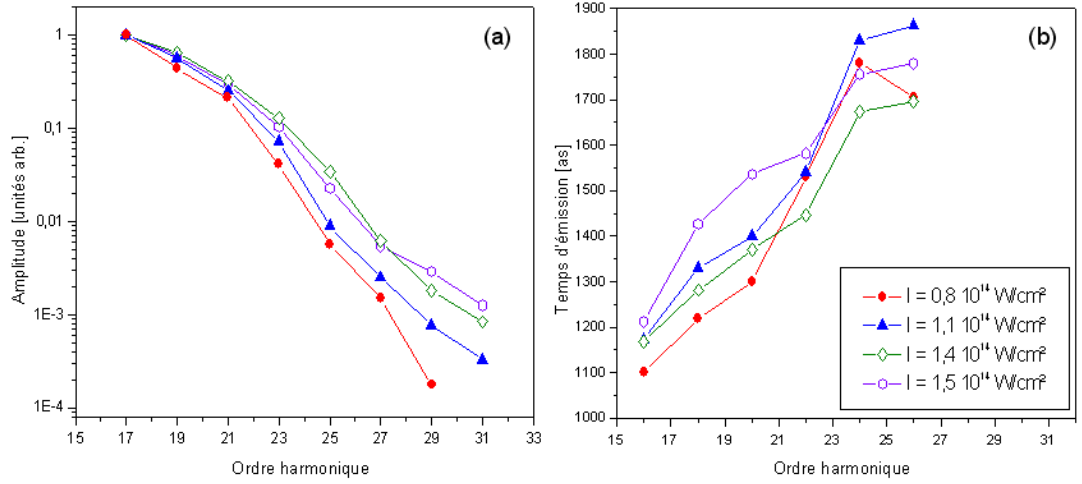


FIG. 6.18: Spectres (a) et temps d'émission (b) mesurés dans CO_2 pour différents éclairagements de génération (cercles rouges : $I = 0,8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, triangles bleus : $I = 1,1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, losanges verts : $I = 1,4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, hexagones violets : $I = 1,5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$).

faisceau de génération, le signal harmonique est minimal. De ce fait, les mesures à faibles éclairagements sont extrêmement difficiles faute d'obtenir un signal suffisamment intense. Pour ces raisons nous avons dû nous restreindre à une gamme d'éclairagements allant de $0,8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ à $1,5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (Fig. 6.18). Entre les deux mesures extrêmes, la position de la coupure ne semble se déplacer que d'un ordre. Lorsque l'éclairement est de $0,8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, le saut de phase est visible à l'ordre 21, contre 23 pour un éclairage de $1,5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Enfin, pour des valeurs intermédiaires, les temps d'émissions présentent un saut en deux temps : à l'ordre 21 on observe une légère inflexion de la courbe, suivi d'une augmentation plus franche de la pente à partir de l'ordre 23 (courbe bleue). Nous avons donc par cette dernière mesure accès à la transition entre les deux situations précédentes.

La figure 6.19 résume les dépendances des deux molécules en fonction de l'éclairement de génération. La position du saut de phase varie, tout comme la position de la coupure, linéairement avec l'éclairement. Cependant, la variation dans le cas de l'azote est environ deux fois plus rapide que dans le cas du dioxyde de carbone.

Enfin, nous avons pu vérifier que pour les différentes valeurs d'éclairagements, les dépendances angulaires de la génération d'harmoniques restaient inchangées. Lorsque l'éclairement de génération augmente de $0,8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ à $1,4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$,

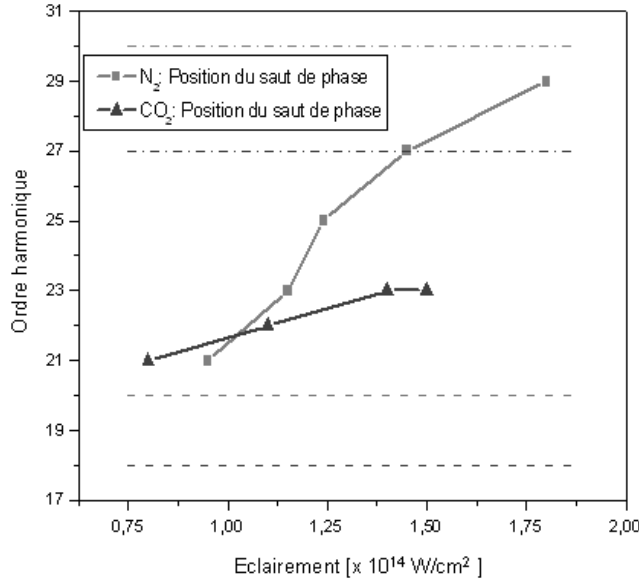


FIG. 6.19: Positions expérimentale (courbes pleines) et théorique selon le modèle à deux centres émetteurs (traits : sans I_p , traits-points : avec I_p dans le calcul de la longueur d'onde électronique) du saut de phase en fonction de l'éclairement de génération pour CO_2 (courbes roses) et N_2 (courbes oranges).

l'effet d'interférence a lieu sur un ordre plus élevé, mais disparaît toujours lorsque les molécules sont alignées perpendiculairement à la polarisation du faisceau de génération. Cet effet est visible à la fois sur le spectre (Fig. 6.20(a)) et sur le saut de phase (Fig. 6.20(b)).

6.2.2 Dynamique électronique fonction de l'éclairement

Ainsi que nous l'avons vu au paragraphe précédent, la structure du saut de phase varie avec l'éclairement du laser de génération. Par conséquent, la dynamique électronique lors de la génération s'en trouve modifiée. Afin de nous affranchir des effets liés à la dépendance de la dérive de fréquence attoseconde avec l'éclairement, nous avons étudié le profil temporel de l'émission harmonique uniquement pour des énergies supérieures à 90% de l'énergie qui correspond à la coupure. En effet, l'émission des différents ordres situés dans la coupure est synchronisée. De plus, la valeur de saturation des temps d'émission est indépendante de l'éclairement (Mairesse et al., 2004). De ce fait, l'émission harmonique pour les ordres considérés est indépendante de l'éclairement.

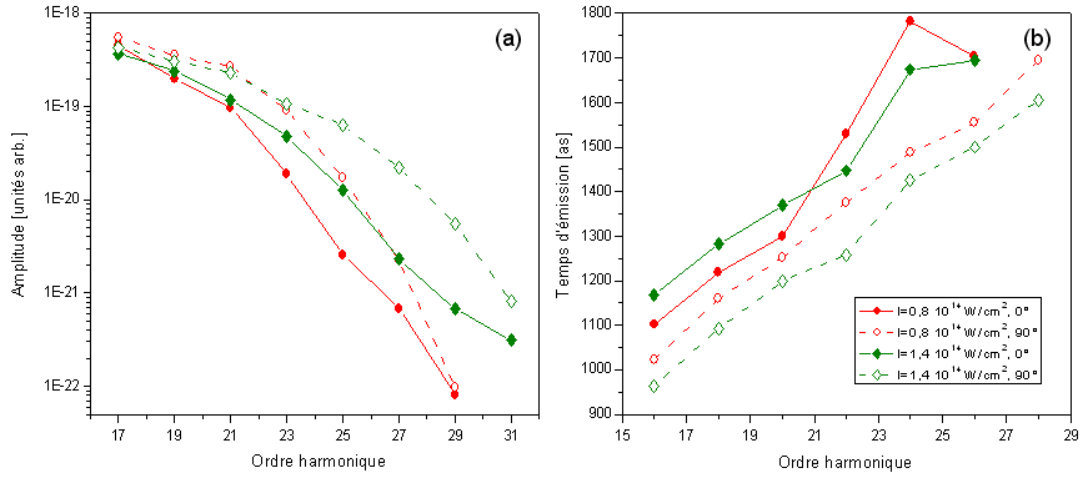


FIG. 6.20: (a) Spectre et (b) temps d'émission mesurés dans le CO_2 pour deux orientations (courbes pleines : 0° , tirets : 90°) et deux éclairements de génération (cercles rouges : $0.8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ et losanges verts : $1.4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$).

La figure 6.21(a) représente des impulsions du train générées dans l'azote pour différents éclairements, pour lesquels le saut de phase se situe, par ordre croissant d'éclairement, aux ordres 21, 25 et 29. Le fait que ces impulsions ne soient pas synchronisées indique que le saut de phase varie avec l'éclairement, non seulement en position mais aussi en amplitude. La dynamique lors de l'étape de recollision est légèrement différente pour des éclairements plus élevés. De plus, la figure 6.21(b), qui compare les impulsions attosecondes émises dans le CO_2 pour deux éclairements et deux orientations montre que les harmoniques de la coupure sont bien synchronisées lorsque le phénomène d'interférence est absent, c'est à dire lorsque les molécules sont orientées perpendiculairement à la polarisation du champ laser de génération.

6.3 Conclusion

Depuis 2002, date de la publication du modèle à deux centres émetteurs par [Lein et al. \(2002a\)](#), de nombreuses expériences ont étudié l'effet des interférences quantiques lors de l'étape de recombinaison du processus de génération d'harmoniques dans les molécules. Cependant, toutes ces études ont porté sur la mesure du spectre du rayonnement harmonique. Nous avons lors de cette thèse mis en place un dispositif de mesure de la phase spectrale des harmoniques générées

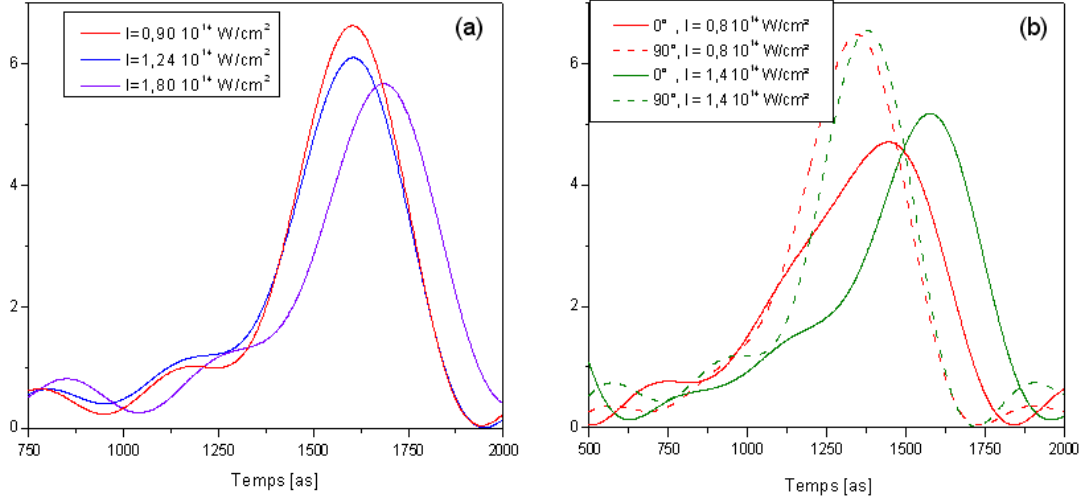


FIG. 6.21: Profil temporel de l'émission harmonique (a) dans l'azote et (b) dans le dioxyde de carbone en fonction de l'éclairement. Ne sont pris en compte que les énergies supérieures à 90% de l'énergie de la coupure. (a) courbe rouge : $I=0.9 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, H19-H25; courbe bleue : $I=1.24 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, H23-H27; courbe violette : $I=1.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, H27-H33. (b) courbe rouge : $I=0.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, H19-H25; courbe verte : $I=1.4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, H21-H27.

dans les molécules alignées. Nous avons mis en évidence la présence d'un saut de phase à la position du minimum dans le spectre, prouvant ainsi qu'un phénomène d'interférences quantiques destructives avait lieu, à la fois dans l'azote et le dioxyde de carbone, deux molécules de symétries différentes. De plus, nous avons observé dans le dioxyde de carbone une dépendance du saut de phase avec l'orientation des molécules par rapport à la direction de polarisation du faisceau laser de génération, en accord avec le modèle à deux centres émetteurs.

Ce modèle simple ne permet cependant pas d'expliquer toutes nos observations. En effet, le saut de phase obtenu dans l'azote est indépendant de l'orientation des molécules dans le champ laser. Les caractéristiques de l'azote laissent à penser qu'il est nécessaire de prendre en compte d'autres niveaux de la molécule lors du processus de génération d'harmoniques. En effet, le premier état excité de l'azote possède un potentiel d'ionisation de 16.69 eV, contre 15.6 eV pour le niveau fondamental, et la symétrie de ces deux niveaux est différente. Certains modèles proposent en effet de tenir compte d'effets multiélectroniques ([Patchkovkii et al., 2006](#)), ou des effets de dynamiques intermoléculaires lors de l'étape d'ionisation tunnel ([Xie et al., 2007](#)).

Outre ces effets d'orientation, nous avons mis en évidence une dépendance du saut de phase en fonction de l'éclairement de génération. Nous avons observé un déplacement des interférences vers les ordres harmoniques élevés lorsque l'éclairement augmente. Cet effet, non prévu par le modèle à deux centres émetteurs, devient néanmoins possible pour les modèles plus complexes.

La mesure de la phase spectrale nous a de plus permis d'étudier la dynamique de l'émission harmonique dans les molécules. Lorsque l'effet d'interférences est absent (pour les ordres les plus faibles, ou lorsque CO_2 est aligné à 90° par exemple), on retrouve dans les molécules les mêmes dynamiques électroniques que dans les atomes. Par contre, les effets de phase dus aux interférences destructives ont pour conséquence de retarder l'émission des harmoniques. Il est donc possible de modifier les trains d'impulsions attosecondes en jouant sur l'éclairement de génération, la molécule utilisée ainsi que son orientation. Nous avons de plus vu au chapitre précédent que ces études permettaient a priori la reconstruction de l'orbitale HOMO des molécules. Nous reviendrons sur ce point dans le chapitre suivant.

Chapitre 7

Conclusion de la seconde partie et perspectives

Lors de cette seconde partie, nous avons concentré nos études sur les gaz moléculaires, tout en nous intéressant principalement aux aspects temporels et spectraux du phénomène. Nous reviendrons au cours de ce chapitre sur les résultats obtenus dans les molécules puis nous discuterons des apports de la génération d'harmoniques dans le cadre de l'imagerie moléculaire.

7.1 Résumé des principaux résultats

Ce travail de caractérisation de l'émission harmonique dans certains gaz moléculaires a principalement porté sur deux gaz, l'azote et le dioxyde de carbone, dont nous avons comparé les propriétés à deux gaz rares dits "partenaires", respectivement l'argon et le krypton. Au delà de l'ensemble des travaux récents sur l'étude de la génération d'harmoniques dans ces gaz, qui ne portaient que sur la mesure de l'amplitude des harmoniques, nous avons effectué des mesures de la phase spectrale des harmoniques, en utilisant la technique RABITT largement exploitée au SPAM. De plus, nous avons mis en place un dispositif d'alignement des molécules, afin d'étudier les dépendances de la génération d'harmoniques avec l'orientation des molécules par rapport à la polarisation du champ laser de génération. Pour cela, nous avons utilisé la technique d'alignement impulsif, pour laquelle une première impulsion laser prépare dans le milieu un paquet d'ondes rotationnelles. Ce paquet d'onde se rephase à intervalles réguliers, conduisant à un réalignement périodique des molécules. Le retard entre les impulsions d'ali-

gnement et de génération peut alors être choisi afin de générer les harmoniques dans un milieu présentant les caractéristiques choisies (chapitre 5.1).

Nous avons mis en évidence la présence d'un saut de phase à partir d'un certain ordre harmonique (chapitre 6.1.1.2). Cette position correspond à la position d'un minimum spectral déjà observé dans différents laboratoires. L'observation de ce saut de phase nous a permis d'attribuer sans ambiguïté ce minimum à un effet d'interférences quantiques destructives lors de la recombinaison du paquet d'onde électronique avec l'orbitale HOMO de la molécule.

Nous avons étudié la dépendance de ce saut de phase avec l'orientation des molécules. Si CO_2 semble suivre les prédictions du modèle à deux centres émetteurs, ce n'est pas le cas de l'azote. En effet, nous avons pu observer la disparition du saut lorsque les molécules de CO_2 sont alignées perpendiculairement à la polarisation du champ laser. De plus, pour des orientations intermédiaires, nous avons mesuré un saut de phase intermédiaire entre les cas à 0° et 90° . Le cas de l'azote est plus complexe. En effet, l'effet d'interférence est visible quelle que soit l'orientation des molécules. Le saut de phase est identique pour toutes les orientations, et de ce fait il l'est également lorsque les molécules ne sont pas alignées. De plus, nous avons mis en évidence la dépendance du saut de phase avec l'éclairement du laser de génération, dépendance qui n'est pas prévue par le modèle à deux centres émetteurs. Dans l'azote comme dans le dioxyde de carbone, la position du saut de phase se décale vers les ordres supérieurs lorsque l'éclairement augmente (chapitre 6.2).

Enfin, à partir de la caractérisation spectrale complète de l'émission harmonique, nous avons pu remonter à la synchronisation temporelle de l'émission (chapitre 6.1.2). Nous avons montré que pour les ordres inférieurs à la position du saut de phase, molécules et gaz rares partenaires présentaient un comportement identique. Seuls sont visibles les effets liés à la dynamique du paquet d'ondes électroniques lors de l'ionisation tunnel et de la propagation dans le champ laser. Nous avons mesuré une dérive de fréquence attoseconde entre les ordres consécutifs, dont la valeur Δt_e dépend de l'éclairement laser et qui est identique à celle mesurée dans les atomes, précédemment étudiés par Mairesse et al. (2005). Le saut de phase, lié à la dynamique électronique lors de la recollision du paquet d'ondes avec le noyau, a pour conséquence de retarder l'émission des ordres supérieurs par rapport à ce que l'on observe dans les atomes. Dans l'azote, la synchronisation des harmoniques est indépendante de l'orientation. Le retard de l'émission des harmoniques élevées est de 100 as environ. Par contre, le comportement de CO_2 varie avec l'angle des molécules. Le retard dû au saut de phase est maximal lorsque les molécules

sont alignées à 0° , et vaut environ 150 as. Il décroît ensuite linéairement avec l'angle. Lorsque l'angle vaut 90° , le comportement de l'émission harmonique dans CO_2 est semblable à celui observé dans le krypton. Il faut noter que ce délai est uniquement un effet de phase lié au phénomène d'interférences quantiques, et non pas un retard éventuel qui serait la conséquence du temps nécessaire à l'électron afin de parcourir la distance d'un noyau à l'autre. Cette interprétation est basée en effet sur l'image classique du processus, qui devient caduque dès que l'on parle d'interférences (de plus, le retard mesuré lui est supérieur).

Nous avons donc pu observer des propriétés de la génération d'harmoniques dans les molécules que les théories utilisées actuellement ne permettent pas de prévoir. Néanmoins des modèles plus complexes sont peu à peu proposés. Ainsi, [Xie et al. \(2007\)](#) proposent de prendre en compte les effets liés aux dynamiques intramoléculaires lors de l'étape d'ionisation tunnel. Dans leur modèle, l'ionisation tunnel s'effectue à partir du premier niveau excité de la molécule, et non de l'état fondamental. Au cours de l'impulsion laser, on observe une oscillation des populations de ces deux états. Lorsque les maxima du champ correspondent avec un état excité peuplé, l'émission harmonique peut avoir lieu. Cependant, cet effet est dépendant de l'éclairement laser. Ils observent alors un décalage temporel de l'émission des harmoniques proches de la coupure semblable au décalage que nous avons pu mesurer (Fig. 6.21). Au delà du modèle utilisé, il semble évident que toute dynamique interne à la molécule lors de l'étape d'ionisation tunnel peut conduire à des modifications des propriétés du paquet d'ondes électroniques émis dans le continuum, et ce faisant, modifier les caractéristiques de l'émission harmonique. Il convient alors d'identifier les mécanismes mis en jeu afin d'interpréter correctement les modulations du rayonnement harmonique.

7.2 Reconstruction tomographique d'orbitale moléculaire

L'une des motivations majeures de ce travail de thèse a été la reconstruction tomographique d'orbitale moléculaire proposée par [Itatani et al. \(2004\)](#). Il est en effet possible de voir la génération d'harmoniques comme le résultat de l'interférence entre le paquet d'onde électronique accéléré par le champ laser dans le continuum et la partie liée de la fonction d'onde de la molécule. De ce fait, en approximant le paquet d'onde électronique au moment de la recollision par une onde plane, Itatani et ses collaborateurs ont montré que l'on pouvait relier l'émis-

sion harmonique et la projection de la fonction d'onde sur l'axe de polarisation du champ laser. Ils ont ainsi obtenu par une technique tomographique une reconstruction de l'orbitale HOMO de N_2 . Cependant, leur dispositif expérimental ne permettait que la mesure des amplitudes. Ils ont dû supposer la valeur de la phase spectrale ainsi que de la polarisation du rayonnement (nous verrons par la suite que ces deux quantités sont indispensables). Nous avons réalisé quant à nous une caractérisation plus complète de l'émission, à la fois dans N_2 et dans CO_2 , en mesurant l'amplitude et la phase. De plus, des mesures de polarimétrie ont été effectuées. Malheureusement, le signal, très faible, ne nous a pas permis jusqu'à présent d'aller au delà de l'ordre 23.

Cependant la méthode proposée par [Itatani et al. \(2004\)](#) repose sur un certain nombre d'approximations, plus ou moins sujettes à caution. Tout d'abord, ils considèrent que l'accord de phase est parfait, ce qui leur permet de relier simplement le signal harmonique mesuré à la valeur du dipôle. Ceci impose des conditions de génération très particulières. Il est nécessaire de focaliser le faisceau laser en avant du jet de gaz afin de sélectionner la contribution de la trajectoire courte (voir chapitre 1.1.1). De plus, cela implique de travailler à éclaircissement faible, afin d'éviter une trop forte ionisation du milieu. Cependant nous avons vu que les propriétés de la génération d'harmoniques dépendaient de façon encore inexploquée de l'éclaircissement. Ensuite, leur reconstruction suppose un alignement parfait des molécules. Même si la technique d'alignement impulsional est très efficace, l'alignement obtenu n'est pas parfait, et dépend de plus de la température du gaz et de l'éclaircissement du faisceau d'alignement. Nous avons vu que dans le cas de l'azote, les propriétés du rayonnement harmonique étaient indépendantes de l'orientation. Cela justifie l'hypothèse précédente dans ce cas, mais il n'en est pas de même pour les autres molécules. Enfin, la méthode repose sur l'approximation de l'onde électronique au moment de la recollision par une onde plane. Cette approximation est assez contestable pour des électrons dont l'énergie ne dépasse pas la centaine d'eV. De plus, cette dernière approximation pose un problème supplémentaire, celui de la jauge dans laquelle on travaille. En effet, les calculs effectués dans la jauge longueur diffèrent de ceux effectués dans la jauge vitesse. De plus, au sein de chaque jauge, la relation de dispersion entre fréquence ω_q et vecteur d'onde k_q de l'onde électronique est elle aussi problématique. Deux relations sont possibles, selon que l'on prenne en compte ou non le potentiel d'ionisation I_p :

$$\omega_q = k^2/2 \quad (7.1)$$

$$\omega_q = k^2/2 + I_p \quad (7.2)$$

Les différents résultats expérimentaux ne permettent cependant pas de conclure

sur ce point. Ainsi, [Itatani et al. \(2004\)](#) utilisent la relation (7.1) alors que [Vozzi et al. \(2005\)](#) la relation (7.2). [Levesque et al. \(2007\)](#) montrent pour certains gaz que les deux jauges donnent des résultats similaires si la bonne relation de dispersion est utilisée, mais la généralisation à toutes les molécules n'est pas évidente.

Outre ces considérations théoriques, [Le et al. \(2007\)](#) pointent un autre problème de la méthode. Les fonctions définies en (4.26) comprennent une sommation sur toutes les fréquences, de 0 à l'infini. Cependant, la génération d'harmoniques ne donne accès qu'aux fréquences du plateau. Le et ses collaborateurs ont calculé la génération d'harmoniques dans des molécules pour différentes orientations, et ont comparé la valeur du dipôle obtenu par la méthode de tomographie (dipôle "expérimental") au dipôle obtenu lors de l'interaction d'une onde plane avec l'orbitale HOMO (dipôle "théorique"). La figure 7.1 représente la comparaison de la composante suivant l'axe de la molécule des dipôles "expérimentaux" et "théoriques" pour différentes orientations. Le désaccord entre ces deux quantités aux faibles ordres harmoniques est dû aux limites du modèle de Lewenstein. Dans la région du plateau, ces deux quantités sont semblables, mais dans la zone de la coupure les dipôles "expérimentaux" s'écartent à nouveau des valeurs théoriques. Il est possible d'augmenter la zone d'accord entre "expérience" et "théorie" en utilisant une longueur d'onde plus importante, qui permet de repousser la position de la coupure vers les longueurs d'onde plus courtes.

Alfred Maquet, Richard Taïeb et Jérémie Caillat ont eux aussi développé un code de reconstruction tomographique. Avant d'utiliser nos données expérimentales, ils ont testé la procédure par le calcul. Ils ont utilisé l'orbitale HOMO de l'azote donnée par GAMESS, puis ont calculé analytiquement le dipôle pour les différentes énergies. Puis, après avoir sélectionné une certaine gamme d'énergie, ils ont appliqué la procédure de reconstruction. La figure 7.2 résume les résultats obtenus. La figure (a) représente l'orbitale obtenue par GAMESS. Lorsque la bande spectrale utilisée pour la reconstruction est très large (Fig. (b)), l'orbitale reconstruite est quasi identique à l'orbitale théorique. La figure (c) a été obtenue en utilisant les ordres harmoniques qui nous sont accessibles expérimentalement. La forme générale de l'orbitale est retrouvée, bien que la distance internucléaire soit légèrement agrandie. Les images (d) et (e) montrent la nécessité de disposer de quelques ordres supplémentaires si l'on veut reconstruire plus fidèlement l'orbitale. Bien qu'il paraisse difficile de pouvoir mesurer l'ordre 61, un laser délivrant des impulsions plus courtes que le laser LUCA permettrait de se placer dans les conditions de la figure (d). Nous verrons au paragraphe 7.4 que nous disposerons d'un tel

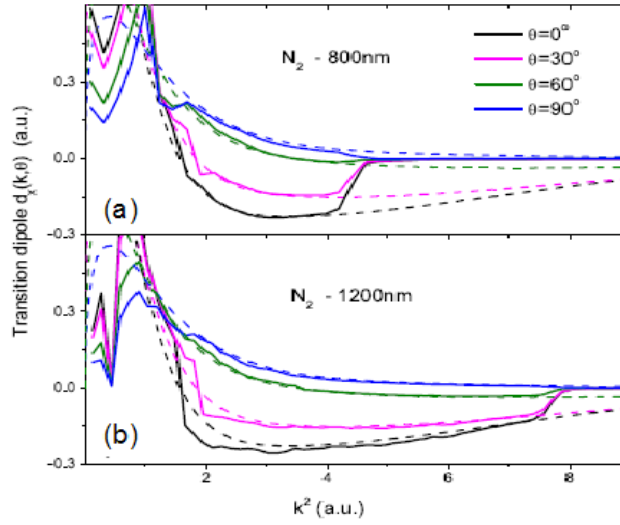


FIG. 7.1: (a) et (b) Comparaison des dipôles "expérimentaux" -obtenus à partir des harmoniques- (lignes continues) et "théoriques" (lignes pointillées) dans N_2 . (en (a), $\lambda_{laser} = 800nm$ et en (b) $\lambda_{laser} = 1200nm$). D'après (Le et al., 2007)

laser dans un avenir proche. Les essais d'utilisation des données expérimentales ne sont à l'heure actuelle pas concluants, bien que leur exploitation soit encore en cours.

Nous l'avons déjà mentionné, Itatani et ses collaborateurs n'avaient pas le moyen de mesurer la phase spectrale des harmoniques. Ils ont donc dû imposer un saut de phase à la position du minimum d'interférence. Nous avons commencé l'étude théorique de l'influence de ce paramètre. Pour ce faire, à partir du calcul analytique des dipôles présenté précédemment, nous avons envisagé plusieurs cas de figure, résumés sur la figure 7.3. Afin de nous rapprocher des conditions expérimentales, nous considérons les ordres harmoniques 17 à 31. La figure 7.3(a) correspond à l'orbitale reconstruite alors (elle est identique à l'orbitale de la figure 7.2(c)). Les mesures de polarimétrie étant incomplètes, nous considérons que le dipôle est parallèle au champ laser, mais que son amplitude est égale au module du dipôle calculé (expérimentalement, la transmission du système est deux fois plus grande pour la polarisation verticale (qui est la polarisation du laser) que pour la polarisation horizontale. De ce fait, l'amplitude mesurée est en réalité égale à la somme de la projection du champ harmonique suivant la direction verticale et de la moitié de sa projection suivant la direction orthogonale). La figure (b) représente l'orbitale obtenue lorsque l'on impose un saut de phase brutal de π à l'ordre 25. La reconstruction est alors beaucoup moins fidèle, certainement à

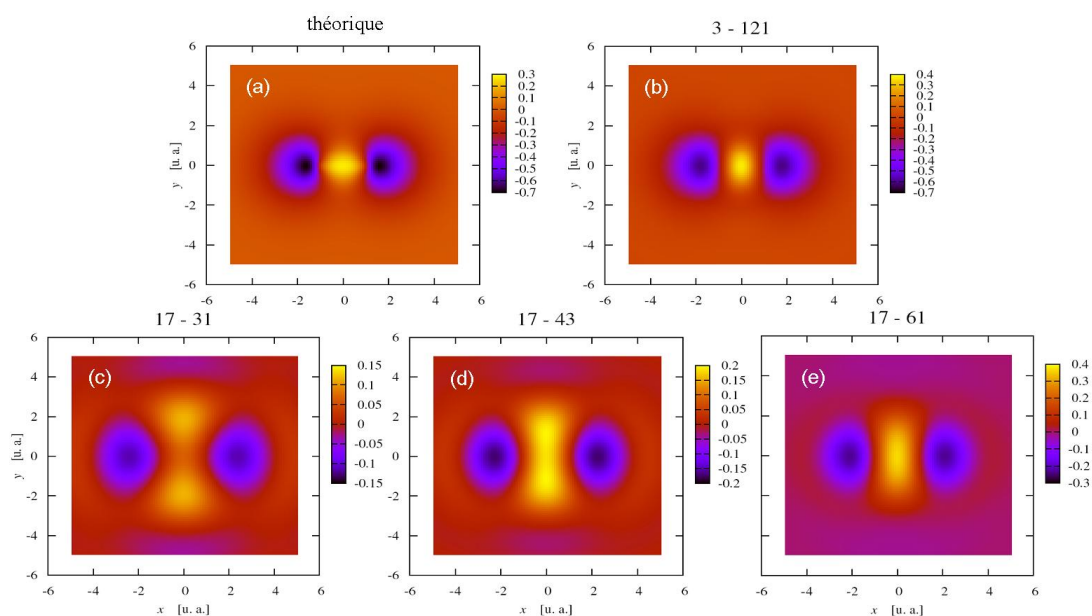


FIG. 7.2: Étude théorique de la procédure de reconstruction tomographique d'orbitale moléculaire. (a) Orbitale théorique de N_2 . (b) à (e) Orbitales reconstruites (voir texte). Les chiffres au dessus des figures correspondent aux ordres harmoniques utilisés pour la reconstruction. Pour plus de clarté, l'échelle de couleur est modifiée entre chaque image.

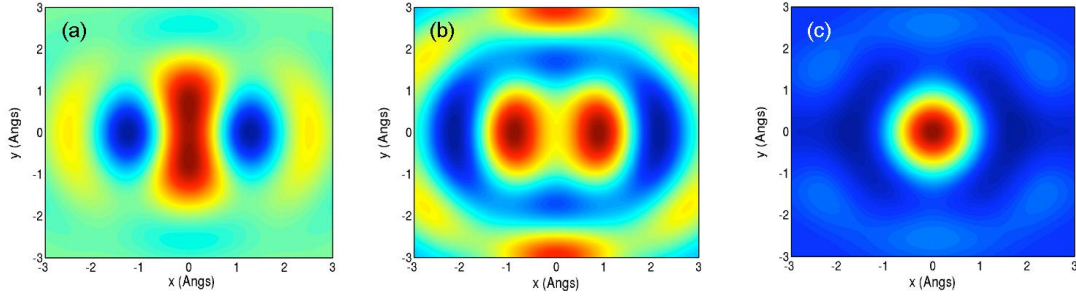


FIG. 7.3: Influence de la phase spectrale pour la reconstruction tomographique. (a), (b) et (c) : reconstructions de l'orbitale HOMO de l'azote (voir texte pour les paramètres).

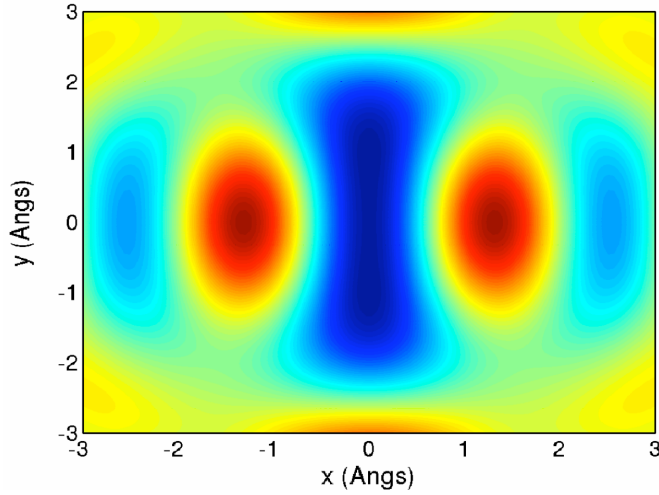


FIG. 7.4: Reconstruction tomographique expérimentale de l'orbitale HOMO de N_2 .

cause de l'hypothèse selon laquelle la polarisation des harmoniques est parallèle à celle du laser. Dans le cas de la figure (c), nous avons considéré la phase des harmoniques comme étant nulle. Toutes les structures de l'orbitale ont alors disparu. Cela montre que la phase est une quantité indispensable pour la reconstruction tomographique, ce qui justifie nos mesures. Nous devons encore vérifier l'influence de la forme du saut de phase. En effet, nos résultats expérimentaux montrent que le saut de phase est en réalité étalé sur le spectre.

Nous avons ensuite appliqué la méthode à partir de nos mesures expérimentales. Nous avons mesuré l'amplitude et la phase spectrale des harmoniques émises dans l'azote pour un panel d'orientations variant de 0° à 90° , avec un pas de 5° . Nous

obtenons alors l'orbitale représentée sur la figure 7.4. Le résultat est très proche de l'orbitale théorique reconstruite analytiquement à partir des mêmes harmoniques (Fig. 7.3(a)).

La technique de reconstruction tomographique d'orbitales moléculaires est donc une technique complexe, même dans le cas de molécules simples telles que l'azote. Nous avons cependant pu réaliser pour la première fois la reconstruction de l'orbitale qui rayonne dans l'azote sans effectuer la moindre hypothèse. Néanmoins, la caractérisation complète du rayonnement harmonique permet d'obtenir d'autres renseignements sur la symétrie de la molécule. De plus, même lorsque l'orbitale reconstruite diffère de l'orbitale initiale, il peut être possible d'extraire des mesures la distance internucléaire (voir par exemple la figure 7.2(c)). Il devient alors possible de suivre l'évolution de cette grandeur en fonction du temps lors d'une réaction chimique.

7.3 Études dynamiques et mesures de phase spectrale

Nos résultats expérimentaux indiquent clairement que les propriétés de la génération d'harmoniques dépendent de la symétrie des molécules génératrices dans le cas de molécules simples. [Torres et al. \(2007\)](#) ont étudié l'émission harmonique (en amplitude uniquement) de molécules alignées plus complexes telles que l'acétylène ($\text{HC}\equiv\text{CH}$) et l'allène ($\text{H}_2\text{C}=\text{C}=\text{CH}_2$). Le même type de dépendance a pu être observé.

De plus, la génération d'harmoniques d'ordre élevé est un phénomène ultrarapide naturellement synchronisé avec le laser de génération. Il est de ce fait possible d'utiliser ce rayonnement pour des études résolues en temps. Comme nous l'avons vu, deux approches sont possibles.

7.3.1 Utilisation de la dérive de fréquence attoseconde

On peut utiliser la dynamique du processus de génération d'harmoniques comme l'équivalent de la ligne à retard qui va permettre de sonder le système à différents instants. Ainsi que nous l'avons évoqué au paragraphe 4.2.1, du fait de la dynamique électronique lors des trois étapes de la génération, les différents ordres harmoniques sont émis à des instants différents, sondant ainsi le système à des

instants successifs, si la dynamique du système est suffisamment rapide (typiquement, la différence des temps d'émission de deux ordres harmoniques consécutifs est de 100 as environ). [Baker et al. \(2006\)](#) ont ainsi étudié les molécules de H_2 et D_2 . Ils ont mesuré le signal harmonique généré par chacune de ces molécules et étudié la valeur du rapport des amplitudes générées par chaque gaz en fonction de l'ordre. Cependant, leur analyse repose sur une hypothèse non vérifiée : la dynamique électronique doit être la même dans les deux molécules afin de sonder le système aux mêmes instants. De plus, ils leurs étaient indispensables d'être exactement dans les mêmes conditions de génération dans les deux gaz. Ils ont eu recours à une mesure précise de la densité de chaque gaz, par une méthode interférométrique. Nous avons reproduit cette expérience, en mesurant la phase des harmoniques générées dans ces deux molécules. Dans le cas d'une mesure de phase, la mesure de la densité devient inutile : la phase spectrale des harmoniques n'est pas sensible à la densité d'émetteurs, tant que la génération a lieu dans des conditions standards. Grâce à ces mesures, nous avons pu vérifier l'hypothèse de [Baker et al. \(2006\)](#). Les temps d'émission mesurés dans H_2 et D_2 sont les mêmes.

Ce type d'étude dynamique se justifie donc bien. Il est cependant nécessaire, dans le cas où l'expérience porte sur des systèmes plus complexes, de vérifier par une mesure des phases harmoniques que les temps d'émission ne varient pas d'une molécule à l'autre. Dans ce cas, les différentes harmoniques sondent le système aux mêmes délais après l'ionisation tunnel.

Nous avons en parallèle essayé de comparer les effets d'interférences quantiques dans ces deux molécules. Cependant, cet effet dépend a priori de l'orientation de l'axe moléculaire par rapport à la polarisation du laser de génération d'harmoniques. Néanmoins, H_2 et D_2 sont des molécules très légères, dont les niveaux de rotation sont très éloignés les uns des autres. Elles sont par conséquent très difficile à aligner. Pour obtenir un bon degré d'alignement, il faut à la fois un éclairage d'alignement suffisamment intense (ce qui pose problème dans le cas de la génération d'harmoniques) et un spectre suffisamment large. Dans nos conditions expérimentales (la durée des impulsions délivrées par le laser LUCA est de 50 fs), il nous a été impossible d'observer l'alignement de H_2 , et nous avons pu observer un faible réalignement de D_2 .

7.3.2 Expériences de type pompe-sonde

Une autre possibilité est l'utilisation de la synchronisation du rayonnement harmonique avec le laser infrarouge ainsi que le caractère ultrabref de l'émission.

Nous avons effectué ce type d'étude lorsque nous avons étudié le signal harmonique en fonction de l'alignement des molécules.

Wagner et al. (2006) ont ainsi pu observer différents modes de vibrations de la molécule SF_6 . Pour cela, ils ont, grâce à une première impulsion laser, excité différents modes de vibrations des molécules par effet Raman. Puis ils ont mesuré le signal harmonique généré par une impulsion sonde en fonction du temps entre ces deux impulsions. Ils ont observé une oscillation du signal, correspondant après analyse par transformée de Fourier à un battement entre les trois modes de vibrations actifs par effet Raman. La période des oscillations de chacun de ces trois modes est de 43, 52 et 63 fs. Une fois encore, l'analyse repose uniquement sur la mesure de l'amplitude des harmoniques. Nous avons essayé de reproduire leur expérience en ajoutant la mesure des phases spectrales, afin d'étudier les éventuels renseignements que la phase pourrait nous apporter sur la dynamique électronique. Cependant, Ces différents modes actifs par effet Raman dans SF_6 ont des fréquences de 525, 643 et 775 cm^{-1} . Le laser LUCA que nous avons utilisé possède une bande passante de 30 nm centrée à 800 nm, ce qui correspond à une bande passante de 470 cm^{-1} environ. De ce fait, nous n'avons pu exciter aucun de ces modes.

Malgré ces échecs, nous restons persuadés que les mesures de la phase spectrale des harmoniques peuvent être une source de renseignements très précieux sur les dynamiques électroniques ou atomiques lors de réactions chimiques. En effet, nous avons déjà mis en évidence des effets d'interférences quantiques lors de la recombinaison des électrons avec leur orbitale initiale de façon statique. La réalisation de telles mesures en dynamique ne demande a priori que quelques modifications techniques que nous allons évoquer au cours du paragraphe suivant.

7.4 Évolutions techniques

Nous l'avons évoqué dans les différentes parties de cette thèse, nous nous sommes heurtés à différents types de problèmes expérimentaux. Les mesures de phase spectrale par la technique RABITT sont en effet très délicates. Nous avons dû résoudre de nombreux problèmes liés aux vibrations, afin de stabiliser la superposition temporelle et spatiale des trois faisceaux lasers sur la durée de l'expérience. Ensuite, le laser LUCA, bien que très stable et très avantageux car très énergétique, a été lui aussi une source de limitations, tant par la durée de ces impulsions que par son taux de répétition. Nous avons réfléchi aux différentes améliorations

que nous pourrions apporter à notre montage expérimental, lesquelles seront normalement disponibles dès la fin 2007.

7.4.1 Nouveau montage expérimental

Afin de diminuer la sensibilité aux vibrations mécaniques, nous avons entièrement repensé le montage expérimental.

Tout d'abord, du point de vue mécanique, nous avons dans un premier temps diminué les sources de vibrations. Le pompage primaire sera installé dans une pièce différente de la salle d'expérience. De plus, nous avons remplacé les pompes turbo à palettes par des pompes à palier magnétique. Ensuite, nous avons changé le bâti expérimental. Le système actuel comporte trois bâtis différents : une première table pour le montage optique, un bâti long et peu rigide pour les chambres de génération et le spectromètre à photons, suivi d'un troisième bâti pour le spectromètre à temps de vol. Nous avons opté pour une solution plus rigide, dans laquelle l'ensemble des optiques (les lignes à retard comme la focalisation des harmoniques) sera solidaire, porté par une même table optique. De plus, les enceintes à vide et les pompes seront découplées des optiques. Un schéma de l'ensemble de ce dispositif est représenté sur la figure 7.5.

Nous avons de plus modifié le dispositif optique des lignes à retard. La recombinaison entre faisceaux d'habillage et harmoniques se fera désormais à la fin du dispositif. Ainsi le faisceau d'habillage ne traversera plus le jet de génération. De plus, il sera alors possible de mettre en forme le train d'impulsions attosecondes en insérant des filtres métalliques sur le trajet des harmoniques ([Lopez-Martens et al., 2005](#)).

Une dernière amélioration sera de diminuer la durée des acquisitions, en utilisant un laser dont le taux de répétition est de 1 kHz au lieu de 20 Hz pour LUCA.

7.4.2 Nouveau système laser

Ce nouveau montage sera installé sur le laser PLFA (pour Plate-forme Lasers Femtosecondes Accordables), le nouveau laser femtoseconde du SPAM. Il s'agit d'un laser titane-saphir, délivrant actuellement des impulsions de 35 femtosecondes et 13 mJ centrées à 812 nm. Son taux de répétition est de 1 kHz. Ce laser, déjà unique de part ces caractéristiques, est déjà en cours d'amélioration. Son os-

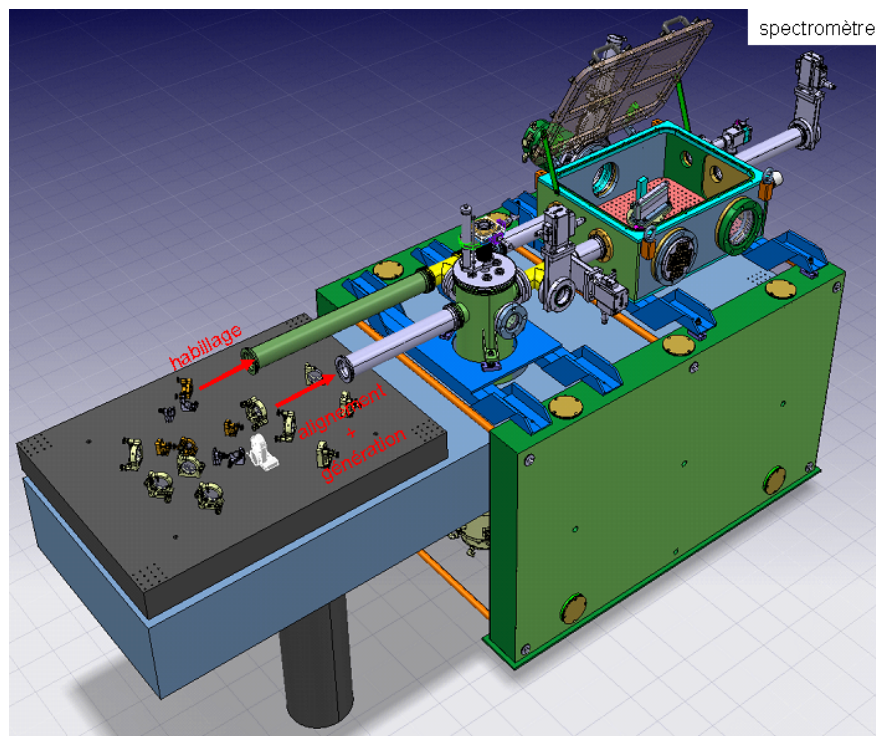


FIG. 7.5: Nouveau dispositif expérimental.

cillateur a été remplacé par un oscillateur stabilisé en phase, et un interféromètre f-2f ([Jones et al., 2000](#); [Baltuska et al., 2003](#)) est en cours de développement afin de contrôler la phase absolue du champ laser après le dernier étage d'amplification. De plus, l'élargissement spectral des impulsions par automodulation de phase lors de la filamentation dans une cellule de gaz rare ([Nisoli et al., 1997](#); [Baltuska et al., 2003](#)) est à l'étude. Après recompression des impulsions par réflexions sur des miroirs chirpés, le but est d'obtenir des impulsions infrarouges de 10 fs, sans perte de la stabilisation de la phase.

Ces impulsions ultracourtes nous permettront alors de reprendre les études sur l'alignement de molécules telles que l'hydrogène ainsi que sur l'excitation des modes de vibrations de SF_6 . Un autre avantage des impulsions lasers infrarouge ultrabrèves est qu'elles permettent de générer un plateau plus étendu et qu'elles réduisent le nombre de recollisions mis en jeu. De ce fait, les renseignements que l'on peut déduire de l'analyse des harmoniques sont plus précis.

Toutes ces améliorations devraient nous permettre d'explorer les possibilités offertes par la génération d'harmoniques d'ordre élevé en tant que sonde des déformations ultrarapides des nuages électroniques ou des noyaux des molécules. La génération d'harmoniques se déroulant sur quelques centaines d'attosecondes, il est en théorie possible de suivre les évolutions de l'orbitale HOMO d'une molécule lors d'une réaction chimique. Une telle étude implique un schéma expérimental d'un degré de complexité encore supérieur. En effet, 4 impulsions lasers sont alors nécessaires. Une première impulsion aligne les molécules, la suivante les excite, la troisième génère les harmoniques. Ce à quoi il faut ajouter une impulsion d'habillage synchronisée avec la troisième impulsion pour les mesures RABITT. En fonction du délai entre les deuxième et troisième impulsions, il est possible de suivre au cours du temps les évolutions de l'orbitale HOMO de la molécule étudiée.

Publications

Generation of attosecond pulses in molecular nitrogen

H. Wabnitz, Y. Mairesse, L.J. Frasinski, M. Stankiewicz, W. Boutu, P. Breger, P. Johnsson, H. Merdji, P. Monchicourt, P. Salières, K. Varju, M. Vitteau, B. Carré
The European Physical Journal D **40**, 305-311 (2006)

Macroscopic control of high-order harmonics quantum-path components for the generation of attosecond pulses

H. Merdji, M. Kovacev, W. Boutu, P. Salières, F. Vernay and B. Carré
Physical Review A **74**, 043804 (2006)

Subcycle dynamics in the laser ionization of molecules

X. Xie, M. Wickenhauser, W. Boutu, H. Merdji, P. Salières and A. Scrinzi
Physical Review A **76**, 023426 (2007)

Isolated attosecond pulses using a detuned second-harmonic field

H. Merdji, T. Auguste, W. Boutu, J-P. Caumes, B. Carré, T. Pfeifer, A. Julien, D.M. Neumark and S.R. Leone
Optics Letters A **32**, 3134-3136 (2007)

Generation of attosecond pulses in molecular nitrogen

H. Wabnitz^{1,a}, Y. Mairesse^{1,b}, L.J. Frasinski², M. Stankiewicz^{2,4}, W. Boutu¹, P. Breger¹, P. Johnsson³, H. Merdji¹, P. Monchicourt¹, P. Salières¹, K. Varjú³, M. Vitteau¹, and B. Carré¹

¹ CEA/DSM/DRECAM/SPAM, bâtiment 522, Centre d'Études de Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France

² J.J. Thomson Physical Laboratory, The University of Reading, Whiteknights, Reading RG6 6AF, UK

³ Department of Physics, Lund University, P.O. Box 118, 22100 Lund, Sweden

⁴ Institute of Physics, Jagellonian University, ul. Reymonta 4, 30-059 Krakow, Poland

Received 13 December 2005 / Received in final form 16 March 2006

Published online 28 June 2006 – © EDP Sciences, Società Italiana di Fisica, Springer-Verlag 2006

Abstract. We have generated attosecond pulse trains in an ensemble of randomly aligned nitrogen molecules. Measurements of the high-order harmonic relative phases and amplitudes allow us to reconstruct the temporal profile of the attosecond pulses. We show that in the considered spectral range, the latter is very similar to the pulse train generated in argon under the same conditions. We discuss the possible influence of the molecular structure in the generation process, and how it can induce subtle differences on the relative phases.

PACS. 42.65.Ky Frequency conversion; harmonic generation, including higher-order harmonic generation – 42.65.Re Ultrafast processes; optical pulse generation and pulse compression – 33.80.Wz Other multiphoton processes

1 Introduction

High harmonic generation (HHG) in the extreme ultraviolet range has drawn much of attention after its first manifestation almost two decades ago [1,2]. Recent experimental breakthroughs have triggered new interests for this source. First, the production of attosecond pulses in atomic gases by superposing several harmonics was achieved. The production of isolated [3,4] as well as trains of attosecond pulses (APT) [5–7] has been experimentally demonstrated and both have already lead to first applications with attosecond time resolution [8,9]. Furthermore, detailed characterisation of the APT production in atoms has provided a much more profound insight in the underlying electron dynamics [10]. Very recently, it was shown that a thorough characterisation of HHG from aligned molecules could provide a tomographic imaging of the highest occupied molecular orbital [11]. Whereas detailed studies have been performed for the production in atoms, the production of APTs in molecules has not been investigated so far. We will therefore present the first characterisation of an APT generated in randomly aligned N₂ molecules using the RABITT technique (Reconstruc-

tion of Attosecond Beating by Interference of Two-Photon Transition) [5,12].

We first give the experimental details and present the set-up in Section 2. In Section 3 we show experimental results for APTs generated in N₂ and compare them to those of an atomic medium (argon). We then discuss the similarities and differences between the two media in the light of the generating process. In the last section (Sect. 4) we discuss further potential consequences on tomographic imaging techniques and give perspectives.

2 Experimental set-up and method

The experimental set-up at the LUCA laser facility is shown in Figure 1. LUCA delivers 50 fs infrared (IR) pulses at 800 nm with a repetition rate of 20 Hz and an energy up to 60 mJ. Shortly after passing a lens ($f = 1$ m), we separate the incoming IR pulse by a beam-splitter (BS) into two parts. The main fraction of energy (75%) (upper path in Fig. 1) generates harmonics in a pulsed gas jet of N₂-molecules (backing pressure = 1.8 bar) positioned closely behind the laser focus (intensity $\sim 1 \times 10^{14}$ W/cm²). By focusing the laser before the generating gas jet we ensure the selection of the short quantum path [13–15]. Further downstream a combination of two IR anti-reflective coated SiO₂-plates serves two goals. Firstly it separates the harmonic radiation which is mainly reflected (and absorbed) from the generating laser beam which is mainly

^a Present address: HASYLAB at DESY, Notkestr. 85, 22603 Hamburg, Germany. e-mail: hubertus.wabnitz@desy.de

^b Present address: NRC Canada, Steacie Institute for Molecular Sciences, 100 Sussex Drive, Ottawa, Ontario K1A 0R6, Canada.

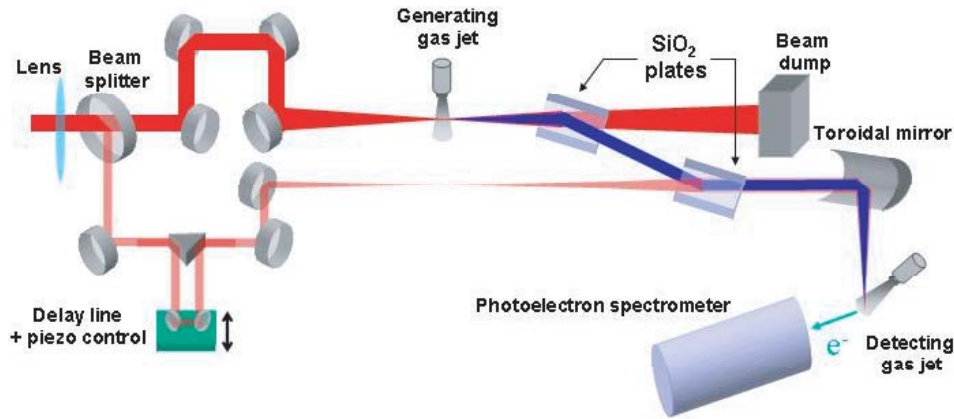


Fig. 1. (Color online) Principal sketch of the experimental set-up. The initial IR laser beam splits into pump and probe branch. The nonlinear interaction of the IR laser in the pump branch with the N_2 molecular jet drives the harmonics production. The harmonics are reflected and refocused into the interaction volume of a MBES, where they produce photo ionisation in argon. Temporal overlap of harmonic pulse and IR probe leads to the appearance of sidebands in the photoelectron energy spectrum.

transmitted. At 10° grazing incidence we have measured an overall reflectivity of the two plates of 1.8% at 800 nm and 30–40% for the 13rd to 21st harmonic. Note that in fact the plates were manufactured for minimum IR reflection at 20° . We decided to use them under 10° in order to increase the harmonic reflectivity and still maintain a suppression of most of the IR pulse energy. We will explain in the next section, why we need a low IR energy in the generating branch. Secondly we use the second SiO_2 -plate to recombine the harmonics with the weaker part (25%) of the initial IR pulse, the IR probe beam. In the probe branch after the BS, the beam passes an optical delay line equipped with a piezo electric translation, before it enters the vacuum chamber collinearly to the generating IR beam, with a lateral separation of 40 mm. The separation allows us to pass the probe beam well outside the generating medium and ensure it does not perturb the generation. After traversing the second SiO_2 -plate the probe is combined with the harmonics. Further downstream both beams are refocused by a broadband Pt coated toroidal mirror ($f = 70$ cm) under 3° grazing incidence into a gas jet (argon) in the source volume of a magnetic bottle electron spectrometer (MBES) [16].

The resulting photo electron spectra show main lines separated by twice the IR photon energy due to single-photon ionisation by harmonics above the first ionisation limit of argon (15.76 eV). When the dressing IR temporally overlaps with the harmonics, additional absorption (or emission) of IR photons is feasible and sidebands appear in between the harmonic lines. As we use the RABITT technique [5,12] to characterise the APT, we have reduced the intensity of the dressing beam ($\sim 4 \times 10^{11}$ W/cm²) in such a way that the energy exchange between the ionising electron and the IR field is restricted to one IR photon. Therefore only first-order sidebands are created¹. By changing the delay between

the IR probe and the APT, the intensity of the sidebands oscillates with a periodicity of $T_0/2$, where T_0 is the period of the fundamental IR field [17]. From this oscillation the difference $\varphi(\omega_{q+2}) - \varphi(\omega_q)$ of the neighbouring harmonics q (centred at the frequency $\omega_q = q\omega_0$) and $q + 2$ can be determined. In combination with the measured spectral amplitudes A_q of the harmonics one can now reconstruct the temporal profile $I(t)$ of the harmonic emission:

$$I(t) = \left| \sum_q A_q \exp[-i\omega_q t + i\varphi(\omega_q)] \right|^2. \quad (1)$$

As mentioned above a small fraction of the generating IR beam passes the combination of the two SiO_2 plates. This residual beam can interfere with the probe IR beam in the interaction region of the MBES. Such optical interference results in an additional modulation of the sidebands with a periodicity of T_0 as the delay varies. This effect does not disturb the RABITT measurement due to its different periodicity. At the same time it allows us to determine the absolute timing of the harmonic emission with respect to IR electric field [18].

3 Experimental results

3.1 Measurements in molecular nitrogen and argon

Our interest lies in the APT generation in N_2 and the specific features due to its molecular structure. Therefore we compare the experimental results for N_2 with an atomic system. In this case we have chosen argon, because the ionisation potential and the intensity-dependent ionisation probability are very similar [19] to those of N_2 ($I_p = 15.58$ eV). So we performed two series of measurements keeping exactly the same experimental conditions, changing only the generating gas from N_2 to argon, thereby making sure that also phase matching in the two media is similar and propagation effects are negligible. For

¹ This was independently confirmed by the absence of higher order sideband frequencies in the Fast Fourier Transform (FFT) spectrum.

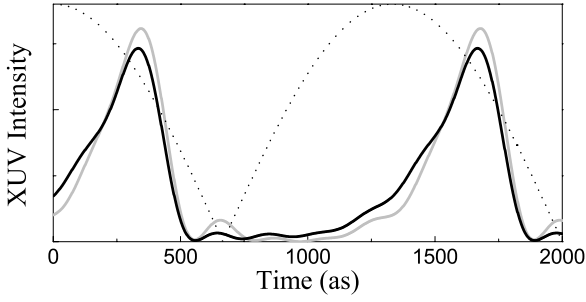


Fig. 2. Reconstructed temporal profiles of attosecond pulses generated in N₂ (black line) and in argon (grey line). The dashed line shows the absolute value of the electric field of the generating IR laser.

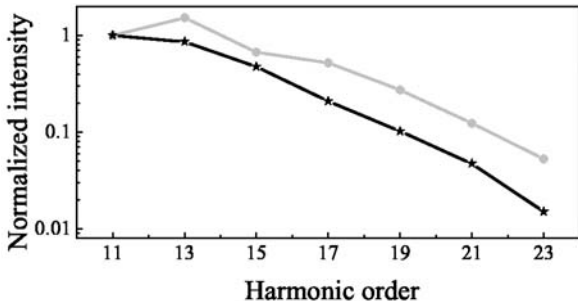


Fig. 3. Normalised harmonic intensities for generation in N₂ (black) and argon (grey).

the analysis of the harmonic emission we have chosen a group of seven harmonics (11th–23rd). The reconstructed temporal profiles of the generated attosecond pulses are shown in Figure 2. The profile obtained in N₂ (black line) is very similar to the one of argon (grey line). Its duration of ~ 300 as (FWHM) is slightly longer than for argon (~ 280 as). The timing of the two APTs with respect to the IR laser is nearly identical, as can be seen by a comparison to the absolute value of the IR electric field (dotted line) in Figure 2. We would like to note, that we found an additional delay of 300 as compared to the results in [6]. This shift in our set-up is probably due to the dephasing of the IR field with respect to the harmonics during the reflection on the SiO₂-plates. This effect does not affect the comparison of harmonics from N₂ and argon.

The harmonic intensities for N₂ and argon are compared in Figure 3. As a function of harmonic order both curves show a smooth monotonic decrease of intensity without any extrema. The intensity of N₂ (black line) decreases faster, which is in accordance with earlier results [20].

In Figure 4 we compare the harmonic emission times $t_e = \partial\varphi/\partial\omega$, i.e. the group delays. In the RABITT method, the measurement of the phase of the sideband oscillation [5,12] as the delay varies provides the phase difference between two consecutive harmonics $\varphi(\omega_{q+2}) - \varphi(\omega_q) \approx 2\omega_0 t_e(\omega_{q+1})$. We measure this quantity by Fast Fourier Transforming the sideband oscillation and averaging the phase around the frequency of the oscillation in the Fourier domain. Please note, that even for weak

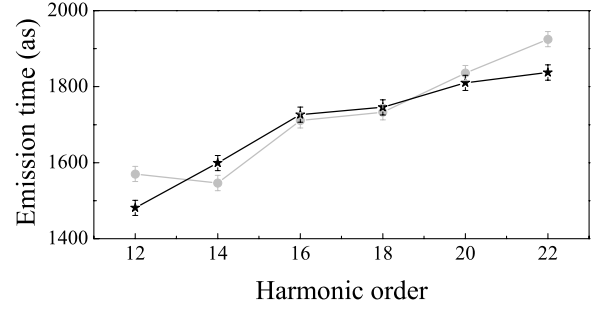


Fig. 4. Harmonic emission times for generation in N₂ (black) and argon (grey). Please note that it is inherent to the RABITT method that emission times are computed at even orders, for further information see text.

sideband intensities the phase of the sideband oscillation is measured with good precision, because the Fourier analysis allows easily to extract the oscillatory from the continuous part. The standard deviation provides the uncertainty on the sideband phase, and therefore on the emission time. An additional uncertainty is due to the measurement of the temporal reference. It is evaluated by the same method, and corresponds to a constant temporal shift of all harmonics.

The emission times of high harmonics generated in N₂ increase approximately linearly with the order, which is characteristic of a linear chirp of the attosecond pulses. This atto chirp can be quantified by measuring the slope of a linear fit of the emission times, and determining the time difference Δt_e between emission of two consecutive harmonics [6]. One obtains for these generating conditions $\Delta t_e^{\text{N}_2} = 70 \pm 10$ as. This positive atto chirp of harmonic emission is characteristic of the macroscopic selection of the short quantum path [13,21,22].

The emission times in N₂ can be compared to the ones measured in argon under the same conditions². The atto chirp is in that case $\Delta t_e^{\text{Ar}} = 76 \pm 10$ as, which is very close to the value obtained in N₂. On the whole, the harmonic emission times are similar for both generation media. Previous studies in argon have shown that the atto chirp is due to the details of the electron dynamics in the continuum during the generation process. The similarity between the two sets of measurements presented here therefore indicates that these dynamics are very similar in Ar and N₂. In the following, we discuss the details of this generation mechanism and its influence on the harmonic emission times.

3.2 Discussion

The harmonic emission times are determined by the dynamics of the electrons in the generation process. In this section, we present the generation mechanism and discuss

² In [6], it was shown that the chirp depends strongly on the laser intensity. In the low ionisation regime, the laser intensity can thus be determined from the chirp value in argon, which yields in our case $\sim 1 \times 10^{14}$ W/cm², as mentioned before.

the influence of the generating medium (atomic or molecular).

The mechanism of HHG is well described by a semi-classical three-step-model [23,24]: in the first step, part of the fundamental electron wave function passes to the continuum by tunnelling ionisation. Next this freed electron wave packet (EWP) propagates in the continuum under the influence of the strong electric field of the laser, before it finally, in the third step, recombines with the remaining part of the initial wave function, emitting an XUV photon. The emission time of this photon as well as its energy, are determined by the trajectory of the electron in the continuum and by the ionization potential of the generating medium.

In the three-step-model it is assumed that the laser electric field is so strong that the influence of the Coulomb potential of the remaining ion on the continuum dynamics of the EWP can be neglected. This is one of the assumptions of the so called Strong Field Approximation (SFA) [25]. Therefore, we would expect no strong difference between argon and N₂ because of this. However, it is well-known that the SFA is valid for harmonics in the plateau region, but fails to describe properly low harmonics that are just above the ionisation potential [25]. The low energy of the corresponding EWP makes it more sensitive to the atomic — or molecular — potential. In fact on the experimental results, we observe that the emission time in N₂ deviates significantly from that in argon for harmonic 12, which is just above the ionization potential. This slight but reproducible difference between Ar and N₂ could result from the influence of the Coulomb potentials on the continuum dynamics of the EWPs leading to the emission of the 11th/13th harmonic and could thus be a signature of the molecular structure. This would be an indication that the SFA is only fully valid for sufficiently high harmonic orders, in our case ≥ 15 th.

The nature of the generating medium does not only influence the Coulomb potential, but also the electronic structure of the fundamental state. This structure should play an important role in the recombination process. It is known from experiments in aligned molecules [11,26] and theory [27,28] that two-centre molecules exhibit a specific interference pattern. For N₂ the authors of [11] have found a minimum in the harmonic amplitude at the 25th order when the molecular axis was aligned parallel to the laser polarisation.

In reference [26] a minimum was reported for CO₂ at the 23rd order when the angle between molecular axis and laser polarisation is 30°. In another experiment, the minimum was also found but at the 33rd order at the same angle [29]. Lein et al. [27] have predicted and explained this behaviour by the intuitive picture of a two-centre interference: the nuclei of the diatomic molecule are regarded as two point emitters. They are hit coherently by the same electron wave, but with a phase difference that depends on the orientation of the molecular axis with respect to the propagation direction of the electron. The existence of two sources leads to interference effects. Extrema of

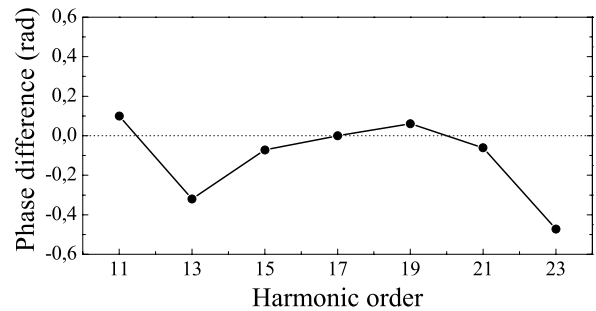


Fig. 5. Difference of harmonic phases generated in N₂ and in argon.

the emission occur for

$$r_0 \cos(\theta) = \frac{n}{2} \lambda_e \quad n = 0, 1, 2, \dots \quad (2)$$

where r_0 is the internuclear distance. Odd orders of n correspond to minima and even to maxima, when the ground state orbital is symmetric, for example N₂ 3 σ_g . For an antisymmetric orbital (e.g. O₂ 2 π_g), the situation is reversed and odd orders correspond to maxima and even to minima. Here the de Broglie wavelength of the electron under the influence of the potential is simply $\lambda_e = h/\sqrt{2m_e E}$, where E is the corresponding harmonic energy. The position of the first extremum on the harmonic spectrum is given by $E = h^2/8m_e r_0^2 \cos^2 \theta$.

As usual when interference occurs, one would expect a π -jump in the phase. The simulations performed in H₂ [27] indeed show that the minimum in harmonic yield is accompanied by a change in the harmonic phase of about one π -radian. The authors further explain this behaviour with a change of the location in the molecule, from which the leading portion of radiation is emitted. We want to recall that all calculations in [27] were done for H₂⁺ and H₂. It is not a priori clear that they hold in detail also for N₂. Nevertheless we feel that a discussion of our experimental results within the above picture might be interesting, also because our measurements are the first of harmonic phases in molecules.

The first minimum in the harmonic emission for N₂ aligned with the laser polarisation was found in [11] to be the 25th harmonic. Below this order, the harmonic relative phases are expected to be determined by the electron dynamics in the continuum. This can be compared with the difference of the relative phases of N₂ and argon measured in our experiment. It should be clear that the phase difference in Figure 5 is only defined up to an arbitrary constant. Under the assumption that the harmonic phases of both media do not differ where the corresponding harmonic emission times coincide, we have set the phase reference at harmonic 17. From the smooth progression of the phase difference between harmonic 15 and 21 it becomes obvious that this choice is not critical. At the same time, the beginning of this range of very similar phases is in agreement with the onset of the strong field approximation at harmonic 15. This measurement therefore demonstrates that the continuum dynamics of the EWP are very similar in both media.

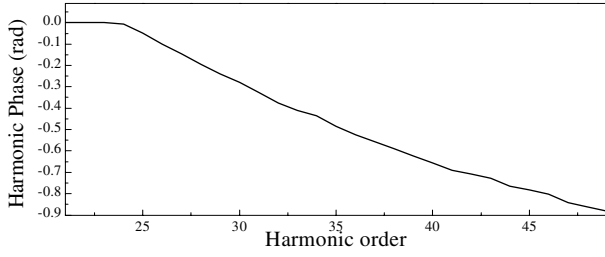


Fig. 6. Variation of the harmonic phases due to interference effects in N_2 . Calculation for random alignment of the molecules, assuming the π -jump to start at harmonic order 25. For more details see text.

At high photon energy (harmonic 23 in Fig. 5) the congruence between the atomic and the molecular system seems to weaken again. One might wonder if this is not the onset of the π jump in the phase, due to the interference process in the recombination. However, in our experiment there is a random alignment of the N_2 molecules, so that we can expect some sort of smearing effect because when the alignment angle increases, the phase jump is shifted to a higher order. Using the two-center interference model, we can estimate the influence of random alignment on the resulting phase, as a function of the harmonic order. At a given orientation θ of the molecule there is a minimum in the harmonic amplitudes, at the order $q_m(\theta) = \pi h / 4\omega_0 m_e r_0^2 \cos^2 \theta$. We assume that the harmonic phase is flat, except for a π jump through the interference minimum: $\varphi_q = 0$ if $q < q_m(\theta)$ and $\varphi_q = -\pi$ if $q > q_m(\theta)$. We choose the distance r_0 between the two interference centres in nitrogen to be 0.1 nm, which corresponds to a minimum around harmonic 25 at $\theta = 0^\circ$ as was measured in [11].

The resulting electric field \mathfrak{E}_q composed of all contributions corresponding to different angles θ with respect to the laser polarisation is [30]

$$\mathfrak{E}_q \propto \int_{\theta=0}^{\pi/2} a_q(\theta) e^{-i(\varphi_q(\theta))} \sin(\theta) d\theta \quad (3)$$

where $a_q(\theta)$ and $\varphi_q(\theta)$ are the different harmonic efficiencies and phases for different angles. We assume here that the harmonic amplitudes do not vary with the angle. Figure 6 presents the phase of the resulting electric field as a function of the harmonic order. A phase variation is visible, but it is smoothed over harmonic orders $q > q_m(\theta = 0^\circ)$. Furthermore, the magnitude of the jump is smaller than π .

As simple as this model is, we can draw some conclusions from the result: (i) a signature of the interference process is present in the harmonic phases, even with random alignment, and should therefore be measurable. Please note that the phase variation is even more pronounced if the decrease of the harmonic amplitude with increasing angle is taken into account. (ii) The magnitude of the phase variation is strongly affected by the averaging, making quantitative comparison with theory difficult. (iii) The jump starts at order 25, whereas in our measurements, we observe a deviation already at harmonic 23.

Measurement of the phase of higher orders was prevented by the low photoionisation cross section of the detecting gas (argon) at these high photon energies.

In a very recent theoretical publication [31], the authors conclude that the admixture of both s and p atomic orbitals to the $N_2 3\sigma_g$ molecular orbital hampers an explanation of the interference pattern in the two-centre interference model. Therefore it is quite possible that the phase difference in our measurements reveals experimentally the complexity of the recombination process in N_2 .

4 Perspectives

The measurement of the relative harmonic phases has important consequences on applications such as tomographic imaging of molecular orbitals [11]. Likewise it can offer a thorough comparison of theory and experiment for more complex molecules than H_2 [31].

In [11] Itatani et al. demonstrate the tomographic reconstruction of the $N_2 3\sigma_g$ orbital. To this end they generate harmonics in an ensemble of aligned N_2 molecules and measure the harmonic yield (17th to 43th) for 19 different angles θ . The harmonic spectrum can be considered as an experimental evaluation of the complex electric dipole \mathfrak{D} :

$$\mathfrak{D}(\omega) = \mathfrak{a}(k(\omega)) \int \Psi_g^*(\mathbf{r}) e \mathbf{r} e^{ik(\omega)x} d\mathbf{r}. \quad (4)$$

Here the recolliding electron wavepacket is expanded in a superposition of plane waves $\Psi_c = \int \mathfrak{a}(k) e^{ikx} dk$ with the complex amplitudes $\mathfrak{a}(k)$ while the harmonic frequency is ω .

Itatani et al. succeed in evaluating the integral in equation (4) (which in turn means determining the spatial Fourier components of $\mathbf{r}\Psi_g$) by applying a few assumptions which we will highlight in the following. A detailed expression of the complex harmonic spectrum for generation in N_2 and Ar is

$$|\mathfrak{G}^{N_2}(\omega)| e^{i\varphi^{N_2}} = \omega^2 |\mathfrak{a}^{N_2}(k(\omega))| e^{i\varphi_c^{N_2}} \langle \Psi_g^{N_2} | e \mathbf{r} | e^{ik(\omega)x} \rangle \quad (5)$$

and

$$|\mathfrak{G}^{Ar}(\omega)| e^{i\varphi^{Ar}} = \omega^2 |\mathfrak{a}^{Ar}(k(\omega))| e^{i\varphi_c^{Ar}} \langle \Psi_g^{Ar} | e \mathbf{r} | e^{ik(\omega)x} \rangle. \quad (6)$$

On the left hand side in both equations the complex spectrum is splitted in modulus (square root of the measured harmonic power spectrum) and phase. We note that $e^{i\varphi^{N_2}}$ and $e^{i\varphi^{Ar}}$ represent the total phase information, including the ionisation and continuum dynamics and the recombination of the EWP. On the right hand side the complex amplitudes $\mathfrak{a}(k)$ are also splitted in modulus and phase, where $e^{i\varphi_c^{N_2}}$ and $e^{i\varphi_c^{Ar}}$ include only the ionisation and continuum dynamics.

The authors in [11] now argue that the processes included in the first (ionisation) and the second step (continuum dynamics) are mainly identical in both media, N_2 and argon. Therefore they assume $\mathfrak{a}^{N_2}(k(\omega)) = \mathfrak{a}^{Ar}(k(\omega))$.

Initially, we equate only the absolute value of these amplitudes, combine equations (5) and (6) and obtain

$$\left\langle \Psi_g^{N_2} | e\mathbf{r} | e^{ik(\omega)x} \right\rangle = \left\langle \Psi_g^{Ar} | e\mathbf{r} | e^{ik(\omega)x} \right\rangle \frac{|\mathfrak{S}^{N_2}(\omega)|}{|\mathfrak{S}^{Ar}(\omega)|} \times e^{i(\varphi^{N_2} - \varphi^{Ar})} e^{-i(\varphi_c^{N_2} - \varphi_c^{Ar})}. \quad (7)$$

The first term on the right hand side of equation (7) can be calculated, because the groundstate wavefunction in argon ($3p_x$) is known. The second term includes the measured harmonic spectra, i.e. is also known. Finally, the phase term shows that only the phase difference between N_2 and argon *in the recombination process* matters for the reconstruction. Following the interference model, the authors in [11] assume a π -jump in the harmonic phases of N_2 compared to argon where the harmonic yield goes through a minimum, in this case the 25th harmonic. With these two assumptions, the authors use the projection of the wavefunction for 19 different alignment angles to reconstruct the $N_2 3\sigma_g$ orbital by tomographic means.

It is clear that the measurement of the harmonic phases is necessary for an accurate tomographic imaging. Our data in Figure 5 on the total phase difference between (randomly-aligned) N_2 and argon already gives interesting information in view of such reconstruction. The similarity observed for the plateau harmonics indicates that the continuum electron dynamics (as well as the recombination dynamics) in both media resemble each other very much in the region investigated here, and thus partially validates the hypothesis done in [11].

The phase difference for the low harmonics 11/13 would indicate that, for these orders, the specific structure of the molecular Coulomb potential has to be taken into account in the ionisation and continuum step. The calibration with an ‘atomic partner’ thus becomes questionable. As a result, we think that in general low harmonics (approximately up to the 13th) should not be included in tomographic methods, even though the magnitude of the deviation is weak in the present case.

The phase difference for the 23rd harmonic indicates a complex recombination process, which in turn could influence the reconstruction of the molecular orbital. Also, the existence of the π -jump has not been experimentally confirmed so far.

To address this problem, we are currently preparing a follow-up experiment, in which we will align N_2 and measure the harmonic phases at different angles. Aligning the molecules should reveal the position and the shape of the π -jump. Measurements of intensities, phases and polarisation of the harmonics will be very valuable for theoretical modelling of the tomographic method applied to molecules of realistic complexity.

In conclusion, for the first time the high order harmonics generated in randomly aligned N_2 -molecules have been spectrally characterised both in amplitude and phase. We have reconstructed the temporal profile of the attosecond pulses comprising the 11th–23rd harmonics. The main result is that atomic and molecular system reveal a strong similarity in pulse duration, timing with respect to the

laser electric field and chirping (positive) under the same experimental conditions. This is a remarkable feature of strong field phenomena. A comparison of experiment and theory underlines the strong similarity. To complete the discussion we propose that subtle differences in the harmonic emission times and harmonic phases at low orders result from the different Coulombic potential of N_2 , which influences the continuum dynamics of the EWP. At high order, the difference cannot be directly explained by the straightforward interference model, but indicates a more complex recombination process in N_2 , that may be due to admixtures of *s*- and *p*-atomic orbitals to the $N_2 3\sigma_g$ orbital. The results show that the measurement of the harmonic phases in aligned N_2 -molecules will help to clarify, in what way these differences will affect applications like tomographic reconstruction of molecular orbitals. They can also serve as a starting point for the theoretical modelling of more complex molecules.

We want to thank Jean Francois Herrgöttlein, Michel Perdrix, David Garzella and Olivier Gobert for their excellent work in providing the LUCA laser facility. For very valuable discussions we thank Manfred Lein, Jérôme Levesque and Fabien Quéré. K.V. is on leave from the Department of Optics and Quantum Electronics, University of Szeged, Hungary. This research was supported by the Marie Curie European Program (MRTN-CT-2003-505138, XTRA and MEIF-CT-2004-009268), the Integrated Infrastructure Initiative (RII3-CT-2003-506350, LASERLAB-EUROPE), the Swedish Science Council and the Engineering and Physical Sciences Research Council of the UK.

References

1. A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T.S. Luk, I. McIntyre, K. Boyer, C.K. Rhodes, J. Opt. Soc. Am. B **4**, 595 (1987)
2. M. Ferray, A. L’Huillier, X.F. Li, L.A. Lompré, G. Mainfray, C. Manus, J. Phys. B **21**, L31 (1988)
3. M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann, G.A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, F. Krausz, Nature **414**, 509 (2001)
4. R. Kienberger, E. Goulielmakis, M. Uiberacker, A. Baltuska, V. Yakovlev, F. Bammer, A. Scrinzi, Th. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, F. Krausz, Nature **427**, 817 (2004)
5. P.M. Paul, E.S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augè, Ph. Balcou, H.G. Muller, P. Agostini, Science **292**, 1689 (2001)
6. Y. Mairesse et al., Science **302**, 1540 (2003)
7. P. Tzallas, D. Charalambidis, N.A. Papadogiannis, K. Witte, G.D. Tsakiris, Nature **426**, 267 (2003)
8. M. Drescher et al., Nature **419**, 803 (2002)
9. P. Johnsson, R. Lopez-Martens, S. Kazamias, J. Mauritsson, C. Valentin, T. Remetter, K. Varju, M.B. Gaarde, Y. Mairesse, H. Wabnitz, P. Salieres, Ph. Balcou, K.J. Schafer, A. L’Huillier, Phys. Rev. Lett. **95**, 013001 (2005)
10. K. Varju, Y. Mairesse, B. Carré, M.B. Gaarde, P. Johnsson, S. Kazamias, R. Lopez-Martens, J. Mauritsson, K.J. Schafer, P. Balcou, A. L’Huillier, P. Salieres, J. Mod. Opt. **52**, 379 (2005)

11. J. Itatani, J. Levesque, H. Niikura, H. Pépin, J.C Kieffer, P.B. Corkum, D.M. Villeneuve, *Nature* **432**, 867 (2004)
12. H.G. Muller, *Appl. Phys. B* **74**, S17 (2002)
13. Y. Mairesse, A. de Bohan, L.J. Frasinski, H. Merdji, L.C. Dinu, P. Monchicourt, P. Breger, M. Kovacev, T. Augustine, B. Carre, H.G. Muller, P. Agostini, P. Salieres, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 163901 (2004)
14. P. Antoine, A. L'Huillier, M. Lewenstein, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1234 (1996)
15. M.B. Gaarde, K.L. Schafer, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 213901 (2002)
16. P. Kruit, F.H. Read, *J. Phys. E Sci. Instrum.* **16**, 313 (1983)
17. V. Veniard, R. Taieb, A. Maquet, *Phys. Rev. A* **54**, 721 (1996)
18. L.C. Dinu et al., *Phys. Rev. Lett.* **91**, 063901 (2003)
19. Y. Liang, A. Augst, S.L. Chin, Y. Beaudoin, M. Chaker, *J. Phys. B* **27**, 5119 (1994)
20. C. Lyngå, A. L'Huillier, C.G. Wahlström, *J. Phys. B.* **29**, 3293 (1996)
21. R. Lopez-Martens, K. Varju, P. Johnsson, J. Mauritsson, Y. Mairesse, P. Salieres, M.B. Gaarde, K.J. Schafer, A. Persson, S. Svanberg, C.-G. Wahlstrom, A. L'Huillier, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 033001 (2005)
22. S. Kazamias, Ph. Balcou, *Phys. Rev. A* **69**, 063416 (2004)
23. P. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993)
24. K.C. Kulander, K.F. Schafer, J.L. Krause, In *Super-Intense Laser-Atom Physics* (NATO ASI B316, 1993), page 95
25. M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, A. L'Huillier, P.B. Corkum, *Phys. Rev. A* **49**, 2117 (1994)
26. T. Kanai, S. Minemoto, H. Sakai, *Nature* **435**, 470 (2005)
27. M. Lein, N. Hay, R. Velotta, J.P. Marangos, P.L. Knight, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 183903 (2002)
28. M. Lein, N. Hay, R. Velotta, J.P. Marangos, P.L. Knight, *Phys. Rev. A* **66**, 023805 (2002)
29. C. Vozzi et al., *Phys. Rev. Lett.* **95**, 153902 (2005)
30. M. Lein, R. de Nalda, E. Heesel, N. Hay, E. Springate, R. Velotta, M. Castillejo, P.L. Knight, J.P. Marangos, *J. Mod. Opt.* **52**, 465 (2005)
31. B. Zimmermann, M. Lein, J.M. Rost, *Phys. Rev. A* **71**, 033401 (2005)

Macroscopic control of high-order harmonics quantum-path components for the generation of attosecond pulses

H. Merdji,¹ M. Kovačev,² W. Boutu,¹ P. Salières,¹ F. Vernay,¹ and B. Carré¹¹CEA/DSM/DRECAM/Service des Photons, Atomes et Molécules, Bât. 522, CEA-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France²Institut für Quantenoptik, Leibniz Universität Hannover, Welfengarten 1, D-30167 Hannover, Germany

(Received 22 March 2006; published 4 October 2006)

We present measurements of the different quantum path contributions to the high-order harmonic emission. Through spatial and spectral filtering, we evidence the strong correlation between the spatial and spectral distributions, which allows us to quantify the contribution of each quantum path. A systematic analysis as a function of the generating parameters has been done to identify the conditions for efficient generation and selection of a single quantum path. We show that combining phase matching and spatial filtering allows maximizing and selecting the short quantum path contribution, condition for the generation of “clean” and intense attosecond pulses.

DOI: [10.1103/PhysRevA.74.043804](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.74.043804)

PACS number(s): 42.65.Ky, 42.65.Re, 42.87.Bg

I. INTRODUCTION

The generation of the high-order harmonics (HHG) of intense laser pulses focused in gases is attracting much attention due to both its fundamental and applied interest [1,2]. Indeed, the advanced characterization of the process both gives insight into the ultrafast atomic dynamics in the laser field, and qualify this source of XUV radiation for potential applications. In particular, measurements of the spatial [3–7] and temporal [8–11] coherence properties have allowed a deeper understanding of the generation process, and have revealed their good quality, which is unique in this spectral range. Together with the short pulse duration and the high energy (up to microjoule energy per pulse [12,13]), these properties have found applications in pump-probe experiments, e.g., for interferometry in plasma physics [14,15], but also in solid state physics and in atomic and molecular spectroscopy [16]. The good coherence also makes the HHG source particularly suitable for seeding soft-x-ray lasers [17] or free-electron lasers [18]. Finally, the spectral coherence over the extended harmonic spectrum is the key for the generation of attosecond pulses: the high harmonic source has opened the field of the so-called attoscience which has been spectacularly growing in the last few years (for a review, see Ref. [19]).

The major above breakthroughs rely on the deep theoretical understanding and experimental mastery of HHG. Profound insight in the generation process has been provided by the semiclassical three-step model [20,21], in which an electron first tunnels out of the atomic potential, is then accelerated in the laser field and finally driven back to the ion leading to recombination on the ground state with emission of a burst of XUV light. Quantum description of HHG within SFA [22] and TDSE [23–25], as well as direct experimental probe of the electron dynamics [26], have grounded the notion of electron trajectories in the laser field, the so-called quantum paths. For harmonic of q th order in the plateau, mainly two quantum paths contribute to the radiating dipole D_q . The two paths differ by the ionization time t_i and emission time t_e , or equivalently the travel time $\tau = t_e - t_i$ of the electron wave packet in the continuum. For the so-called

“short” trajectory (index $j=1$), the travel time τ_1 is of the order of half the optical period, whereas for the “long” trajectory ($j=2$), τ_2 is close to the optical period. The dipole D_q (equivalently the local nonlinear polarization) can thus be expressed as the sum $D_q = D_1 e^{i\phi_1} + D_2 e^{i\phi_2}$ of the two contributions. In the Lewenstein model [22], the phase ϕ_j identifies to the quasiclassical action along the j path and therefore depends on the parameters t_{ej} , τ_j , laser intensity I and XUV frequency q (the order q is considered as a continuous variable denoting the XUV frequency in ω unit). Note that, ultimately, the times t_{ej} , τ_j are in turn functions of I and q , so that for each class of trajectories the phase ϕ_j is completely determined by the laser intensity and the harmonic order q . One further demonstrates that the phase differential can be written as $d\phi_j = \alpha_j dI + t_{ej} dq$, where the partial derivative α_j is determined by the travel time τ_j and is therefore larger for the long trajectories than for the short ones. The α and t_e coefficients vary slowly with the frequency q . In the cutoff, the two classes of trajectories merge into one.

After propagation, the macroscopic XUV field in the plateau is the sum of two terms, referred to as τ_1 - and τ_2 -contributions, respectively,

$$E_q = E_1 e^{i\Phi_1} + E_2 e^{i\Phi_2}. \quad (1)$$

If we assume conditions close to phase-matching, the macroscopic phases take the simple form $\Phi_j \approx q\phi_L + \phi_j$, where ϕ_L is the laser phase including the $-\omega t$ term. On the one hand, the q dependence of the phases in Eq. (1) has important consequences for the generation of attosecond pulses when they are obtained as a coherent sum of quasi-phase-locked (discrete harmonic or continuous) components E_q in the plateau [26–28]. On the other hand, the I dependence, i.e., the temporal and spatial variations, of the phases Φ_j (ϕ_j) determines the coherence properties of E_q , and in particular its spectral and spatial characteristics [1]. First, it is responsible for the intrinsic chirp of the harmonic emission. Second, it also conditions the spatial phase and therefore the spatial profile of the XUV field. The different I dependence of the two quantum paths components (different α_j) thus leads to a spatial and spectral separation of their contribu-

tions to the macroscopic harmonic field [24,29]. The separation has been used to study their different temporal coherence [8,9] and phase matching [10]. However, to our knowledge, there has been no experimental study of the amplitudes E_1 and E_2 , i.e., of the relative weights of the two contributions.

The discrimination and control of the τ_1 and τ_2 contributions are of great importance, first for a fundamental insight on HHG and second for controlling the XUV emission. Theoretically, the relative weight of the τ_1 - and τ_2 -contributions to the single atom response (i.e., D_1/D_2) is still somewhat controversial: the SFA and TDSE approaches lead to different predictions, the τ_2 contribution being usually larger in SFA (and presumably overestimated) than in TDSE [24,25]. Experimental studies are thus needed. Note that the relative weight of the macroscopic contributions (E_1/E_2) is also affected by the propagation, i.e., by the way phase matching is achieved for each contribution. On the control side, producing an XUV field E_q at given frequency, with definite spectral and spatial characteristics, implies in general that only one E_j contribution is selected in Eq. (1), thus limiting the space and time phase variation. Moreover, the production of attosecond pulses from emission in the plateau *demands* to select one single quantum-path, the condition for synchronized (phase-locked) emission over a broad spectral range [30–34]. In the case where the two classes of trajectories contribute, two bursts are emitted with different timings every half cycle, which blurs the attosecond structure. In a number of recent works [26,27,32,33,35,36] the subcycle pulses in HHG have been characterized for a set of harmonics—up to 30 harmonics in Ref. [26]—from measurement of the harmonic relative phases ($d\phi_j = t_{ej} dq$ at fixed I). They have revealed the possibility to generate pulses as short as 130 as that could be further compressed after compensation of their intrinsic chirp [26,33,37]. The experiments assume and partially confirm that, for appropriate generation conditions, propagation and spatial filtering selects mainly the contribution of one quantum path (namely, the “short” path). Actually, more accurate characterization of the subcycle electron dynamics and even shorter attosecond pulses could be achieved from a direct monitoring and a more complete discrimination of the paths contributions.

In this paper, we present measurements of the contributions of the two quantum paths. The control/discrimination of the τ_1 and τ_2 contributions can be envisaged at two levels. At the “upstream” level, one favors one particular contribution by choosing the appropriate conditions in the generation process itself. This is made possible by adjusting the focusing geometry of the laser beam, then using propagation and phase-matching as a “filter.” At the “downstream” level, one takes advantage of the different spectral and spatial characteristics of the E_1 and E_2 components to discriminate them through spectral or spatial filtering. We demonstrate the possibility of combining upstream and downstream control of the τ_1 and τ_2 contributions. In the downstream control, we show in turn how the filtering in the spatial domain can be consistently combined with the one in the spectral domain, and the relative weight of the τ_1 and τ_2 contributions estimated. Finally, we study the variation of this relative weight as a function of different generation parameters.

II. EXPERIMENT

A. Identification of path contributions

We first explain the principle of the upstream and downstream controls of the τ_1 and τ_2 components. As mentioned, it is based on the different phase properties of the τ_1 and τ_2 contributions to the atomic dipole for the upstream control, to the related macroscopic field for the downstream control. Upstream control involves the spatial characteristic of the dipole phase ϕ_j . In the medium, the macroscopic field E_q builds up along propagation under the phase-matching condition [38]

$$\vec{\nabla}\Phi_j \approx \vec{\nabla}(q\phi_L + \phi_j), \quad (2)$$

i.e., equality of the wave vectors of the harmonic field and nonlinear polarization, where $\vec{\nabla}\phi_j = \alpha_j \vec{\nabla}I$. In the case of a free propagating laser beam focused in a gas jet, it has been demonstrated that the smaller gradient $\alpha_1 \vec{\nabla}I$ for the short trajectory in Eq. (2) ($\alpha_1 < \alpha_2$) determines its dominant contribution to on-axis emission, when the laser beam is focused before the jet [24,29,38]. Conversely, the large gradient $\alpha_2 \vec{\nabla}I$ for the long trajectory determines its dominant contribution to off-axis emission, when the laser beam is focused after the jet. The two contributions are therefore discriminated upstream through the focussing geometry. When the two contributions are significantly present after propagation, they are also separated downstream in the spatial domain, in the form of an inner and an outer region in the far-field profile.

Together with the spatial discrimination, the two contributions are discriminated downstream in the spectral domain. Hence in a real laser pulse where I varies in time (within adiabatic approximation for HHG), the intensity-dependent term in the phase Φ_j (ϕ_j) causes a frequency modulation, a chirp, of the harmonic emission [29]:

$$\Delta\omega(t) = -\frac{\partial\Phi_j(t)}{\partial t} = -\alpha_j \frac{\partial I(t)}{\partial t}. \quad (3)$$

It is clear from Eq. (3) that the spectral width Δ_1 [proportional to $(\partial\Phi_1/\partial t)_{\max}$] of the E_1 contribution in Eq. (1) will be smaller than that of E_2 . Thus, spectral or spatial filtering of the macroscopic harmonic field should allow a downstream selection of either τ_1 or τ_2 contribution.

In a first experiment, we perform a similar analysis as in Refs. [8,9] in order to identify the two contributions according to the above discrimination in the spectral and spatial domains. The experiment was carried out at the femtosecond LUCA laser facility of CEA/DRECAM in Saclay (titanium:sapphire system at 800 nm, 80 mJ, 60 fs, 20 Hz). The laser energy is adjusted using a diaphragm. Two phase-locked IR pulses of ~ 1 mJ energy are produced in a Michelson type interferometer and focused with a 1 m focal length lens 4 mm after an argon jet (1 mm length) at a backing pressure of 900 Torr. The interferometer is identical to the one used in Refs. [39,40]. It allows for generating two phase-locked harmonic pulses separated in space and delayed in time, which allows for delay-dependent interference in the far-field. As shown in Fig. 1, XUV light is analyzed with a monochromator consisting in a toroidal mirror, a grating, and an exit

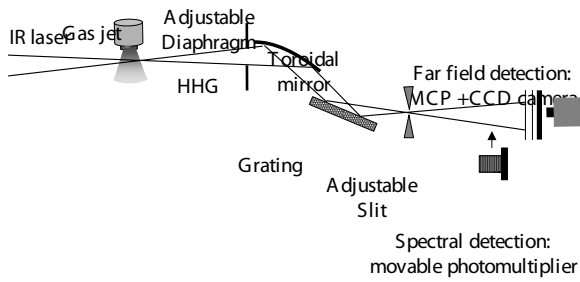


FIG. 1. Experimental setup for the spectral and spatial analysis of quantum path contributions.

slit. The width of the slit can be adjusted to tune the spectral acceptance from few nanometers (selection of one harmonic order with full spectral profile transmitted) to 0.05 nm (harmonic spectral analysis). The far-field spatial distribution is measured on microchannel plates coupled to a phosphor screen and a 12 bit-CD camera. Under assumption of good mutual coherence of the two harmonic sources, the temporal coherence can be mapped in the beam cross section from the far field interference pattern, by varying the delay between the two pulses (laser pulses delay in the Michelson). The slit in the spectral plane was adjusted to select a single harmonic order. We will consider in this study the 17th harmonic which is representative of the behavior in the plateau region. In the inset in Fig. 2, the far-field interference pattern for 17th harmonic, measured in single shot and at zero delay between the two pulses, clearly reveals the two regions that we associate to the contributions of the short (inner region for on-axis emission) and long trajectory (outer region for off-axis emission). The fringes visibility defined as $(I_{\max} - I_{\min}) / (I_{\max} + I_{\min})$ is plotted in Fig. 2 as a function of

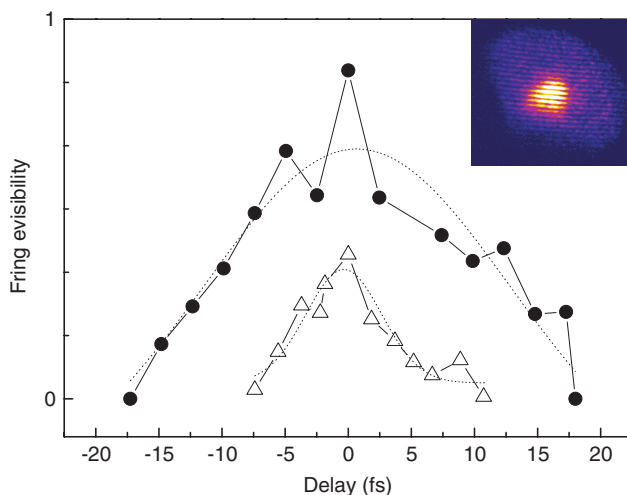


FIG. 2. (Color online) Average visibility of the fringes in the far-field interference pattern for the 17th harmonic, generated in argon, as a function of delay (1st-order autocorrelation trace): short (full circle) and long (open triangle) trajectories contributions. In dotted line are shown the Gaussian fits of the measured traces. The FWHM gives the coherence time. Inset: Interference pattern recorded at 0 delay.

the delay, for the inner and outer regions. Because of the highly controlled, coherent physics of the harmonic generation, the two mutually coherent harmonic sources should produce a fringe visibility close to 1: the two sources are said to be “phase locked.” In practice, slightly different conditions in producing the two sources lead to a visibility between 0.4 (long trajectory) and 0.9 (short trajectory) at zero delay. Surprisingly we measure a lower fringe visibility in the region associated to the long trajectory in contrast to previous results [8] where similar (visibility around 0.5) values were obtained for each contribution. The different phase locking that we measured for the short and the long trajectories may be due to phase matching effects. In particular, the electronic and atomic dispersions in the two focal regions are locally different and this may play a role for on- and off-axis field construction [10]. Consequently the two-source phase locking might be affected differently for each trajectory. However, we should note that this does not affect the following analysis. The coherence time, i.e., the inverse of the spectral width Δ_ω , is defined as the full width at half maximum (FWHM) of the visibility in Fig. 2. The field in the inner region has a long coherence time (24 fs, $\Delta_1 \approx 0.3 \pm 0.05$ nm), whereas it has a shorter one (8 fs, $\Delta_2 \approx 0.9 \pm 0.05$ nm) in the outer region. This confirms the identification of the inner field to the τ_1 contribution (small spectral width) and of the outer field to the τ_2 contribution (large spectral width). Our conclusions and measured coherence times are in good agreement with Refs. [8,9]. Considering that the spectral width mainly reflects the intrinsic chirp [see Eq. (3)], we get an estimate of the α_2/α_1 ratio of the phase coefficients from the coherence times; we find $\alpha_2/\alpha_1 \approx 3$. Although this parameter may not directly scale with α_2/α_1 due to the influence of phase matching, we note that the divergence of the field in the outer region is about 3 times larger than in the inner one [24].

B. Spectral and spatial filtering

We can further evidence the spectral/spatial correlation by introducing a “downstream” filtering of the HHG generated using only one arm of the Michelson interferometer. To this purpose, a motorized adjustable diaphragm is installed in the far-field just before the monochromator. The method is two-fold: (i) we filter out the outer region in the spatial profile with the HHG diaphragm, and monitor the spectral profile, and (ii) we filter out the wings of the spectral profile with the variable slit and monitor the spatial profile in the far field. The laser beam is focused 4 mm after the argon gas jet in order to maximize the long trajectory contribution. The laser energy is varied around 1 mJ (intensity $\approx 5 \times 10^{13}$ W cm $^{-2}$ at focus) in order to minimize self phase modulation of the fundamental pulse via ionization of the gas medium that would induce a blueshift of the laser and subsequently of the harmonic spectra.

Spatial filtering. In the first filtering operation (i), we consider the spatial profile of H17 in Fig. 3(a). It clearly exhibits the inner and outer regions of the inset in Fig. 2, associated to τ_1 and τ_2 contributions, respectively. Now, we vary the HHG diaphragm from 10 mm (full beam) to 1 mm. The sig-

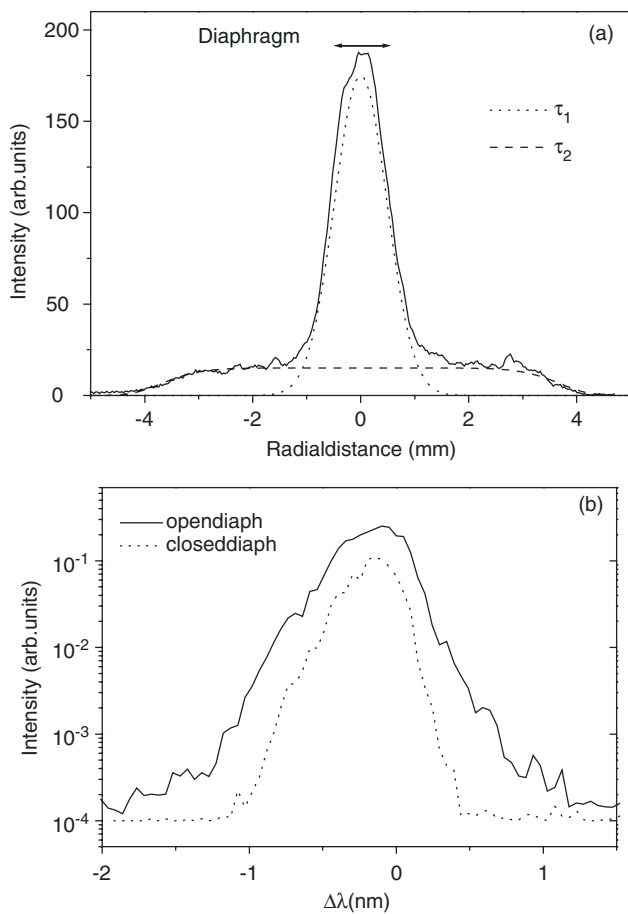


FIG. 3. (a) Spatial profile of the 17th harmonic generated in argon with a laser energy of 0.85 mJ when the laser is focused 4 mm after the gas jet. The laser diaphragm is 12.5 mm. Fits of τ_1 (Gaussian, dotted line) and τ_2 contributions (superGaussian, dashed line). The arrow shows the size of the 1 mm closed HHG diaphragm. (b) Corresponding spectral profiles for an open and a closed HHG diaphragm.

nal decreases and, more importantly, is spectrally narrowed as shown in Fig. 3(b). We relate this narrowing to a substantial cut of the τ_2 contribution operated in the spatial domain.

The evolution of the integrated harmonic signal and of the spectral width (FWHM) as a function of the HHG beam aperture is shown in Fig. 4, for two laser energies 0.85 and 1.25 mJ with a laser diaphragm of 12.5 mm. The larger widths at 1.25 mJ reflect the intensity-dependent broadening, $\Delta_j \sim \alpha_j(\partial I / \partial t)$ due to the intrinsic chirp [10]. For both energies, the maximum values, 0.5 and 0.6 nm for full HHG beam aperture, correspond to the profile under which the spectrally narrow τ_1 contribution (~ 0.3 nm) is superimposed to the dominant and spectrally large τ_2 contribution (~ 0.9 nm); the resulting effective FWHM is therefore in between those of the two fields. The minimum value, around 0.35 nm for both energies, is comparable to that of τ_1 contribution.

In Fig. 4(a), the integrated signal is compared to the one derived from the spatial profile in Fig. 3(a), simulating numerically the transmission of the HHG diaphragm. In the

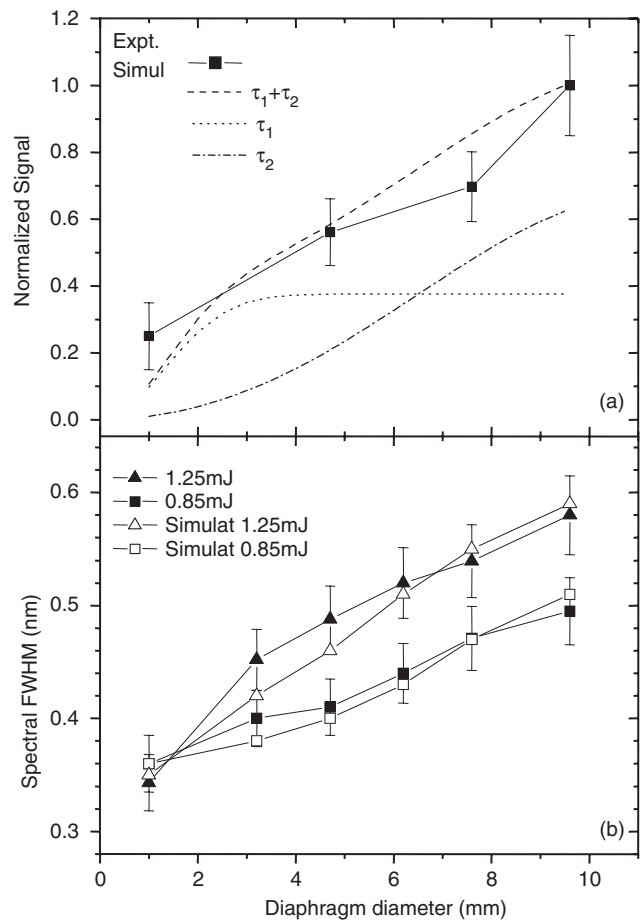


FIG. 4. (a) Integrated spectral intensity of H17 generated in argon as a function of the HHG diaphragm diameter, compared to the simulated signal, sum of the τ_1 and τ_2 contributions. The 12.5 mm apertured, 0.85-mJ laser pulse is focused 4 mm after the gas jet. (b) HHG spectral width for two laser energies; the experimental widths are compared to the effective Gaussian width of the simulated profiles.

latter, we have parametrized the spatial profiles associated to the τ_1 (central structure approximated as a Gaussian profile) and τ_2 contributions (pedestal approximated as a super Gaussian profile). The intensity of each trajectory contribution corresponds to the integrated signal under each curve simulating the τ_1 and τ_2 profiles. The long trajectory contribution is 1.6 times larger than the short trajectory contribution for the full beam. Then, we can estimate the energies $E_1(d)$ and $E_2(d)$, respectively, in the τ_1 and τ_2 contributions by taking into account their respective divergence extracted from Fig. 3(a). The total energy $E_1(d) + E_2(d)$ transmitted through the HHG diaphragm of diameter d plotted in Fig. 4(a) compares satisfactorily with the integrated spectral profile; the plot of $E_1(d)$ and $E_2(d)$ illustrates how the HHG diaphragm changes the relative weight of the two contributions. Now, we want to correlate, at least semiquantitatively, the variation of the τ_1 and τ_2 contributions to the one of the spectral widths in Fig. 4(b). For this, we assume that for each contribution, the spectral profile can be represented by a Gaussian function $G_j(\lambda)$, with width Δ_j . We can retrieve the

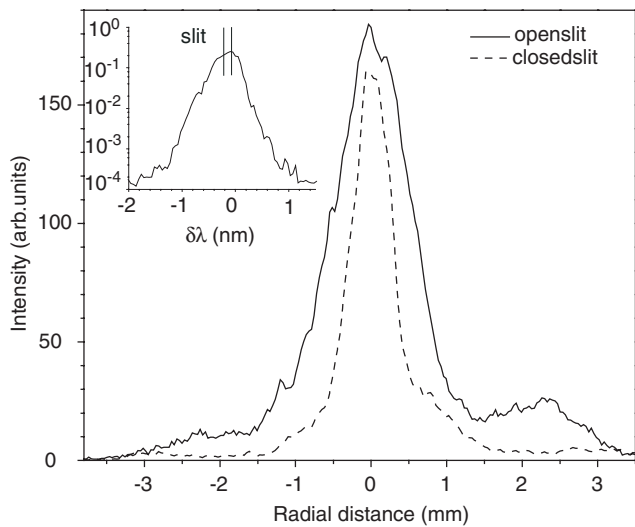


FIG. 5. Spatial profiles of the 17th harmonic generated in argon when the slit in the spectral plane is opened or closed to $\Delta\lambda=0.2$ nm. The 1-mJ laser pulse is focused 4 mm after the gas jet. The inset shows the corresponding spectral profile.

spectral profile of the light filtered, by forming the quantity $\frac{E_1(d)}{\Delta_1} G_1(\lambda) + \frac{E_2(d)}{\Delta_2} G_2(\lambda)$, in which the $G_j(\lambda)$ are pondered by the spectral densities $\frac{E_j(d)}{\Delta_j}$ in each of the τ_j contributions. In the simulation, the widths Δ_i are chosen close to their estimated values in Fig. 2. The effective width (FWHM) of the simulated profile is compared to the measured width at 0.85 mJ in Fig. 4(b). Similar agreement is obtained for the spectral profile modelization at 1.25 mJ laser energy. The agreement between measured and simulated widths should be considered as semiquantitative. It evidences the clear correlation between the variation of the spatial and spectral profiles. It allows to assign this correlation to the differential filtering, in the spatial domain, of the τ_1 and τ_2 contributions. By filtering the outer region of the spatial distribution, we obviously do not “cut” the full τ_2 component, but reduce its contribution below 10% of the total signal.

Spectral filtering. Conversely, in the second filtering operation (ii) on H17, using a variable slit in the monochromator, we “cut” the spectral distribution and monitor the spatial one. Figure 5 displays the spatial profiles of H17 for two slit sizes, respectively transmitting the full spectrum (opened slit) and selecting the central width $\Delta\lambda=0.2$ nm. For the closed slit, the outer region of the spatial profile is almost completely suppressed, the central structure is narrower.

Symmetrically to filtering (i), we can clearly correlate the wings of the spectral profile to the outer region of the spatial distribution, related to the same field, i.e., the τ_2 contribution. In Fig. 5, the reduction of the integrated signal is not as large but still comparable with the one measured in Fig. 4(a) for a small diaphragm aperture.

Finally, the filtering operations (i) and (ii) show that we can, in a consistent way, estimate the weight of the τ_1 and τ_2 contributions from either the spatial profile of the far field, or the spectral profile. The filtering operation (i) in the spatial domain appears even easier and more efficient than in the

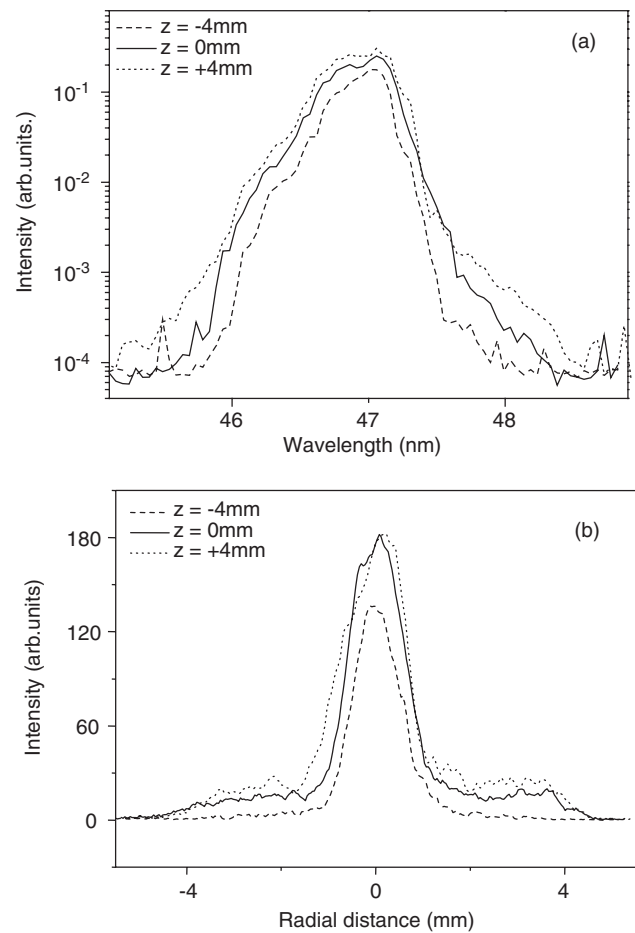


FIG. 6. Measured spectral (a) and spatial (b) profiles of the 17th harmonic as a function of the gas jet position relative to the focus. The laser energy is 1.25 mJ and the laser diaphragm is 12.5 mm.

spectral one. The experimental evidence and our simple analysis are at least in qualitative agreement with the full simulations by Gaarde *et al.* [24], where the atomic dipole was calculated from time-dependent Schrödinger equation and propagation fully taken into account.

C. Variations of the path contributions

We illustrate now how we can analyze the path contributions when some of the generation parameters are varied. First, we have studied the spectral and spatial profiles of the harmonic emission as a function of the jet/focus position ($z=z_{\text{focus}}-z_{\text{jet}}>0$ for focus after the jet). They are, respectively, shown for H17 in Figs. 6(a) and 6(b) (laser energy $E=1.25$ mJ, laser diaphragm $d=12.5$ mm). As observed in the previous studies either in the spatial [9,41] or in the spectral [10,42] domain, we measure a strong dependence of the profiles with the focus position. Our measurement of both quantities allows us to correlate their variation. When the laser is focused before the gas jet ($z=-4$ mm), the spectral and spatial profiles are narrow. When the focus moves into ($z=0$ mm) and after ($z=+4$ mm) the gas jet, the total signal increases, the spectral profile broadens and a pedestal ap-

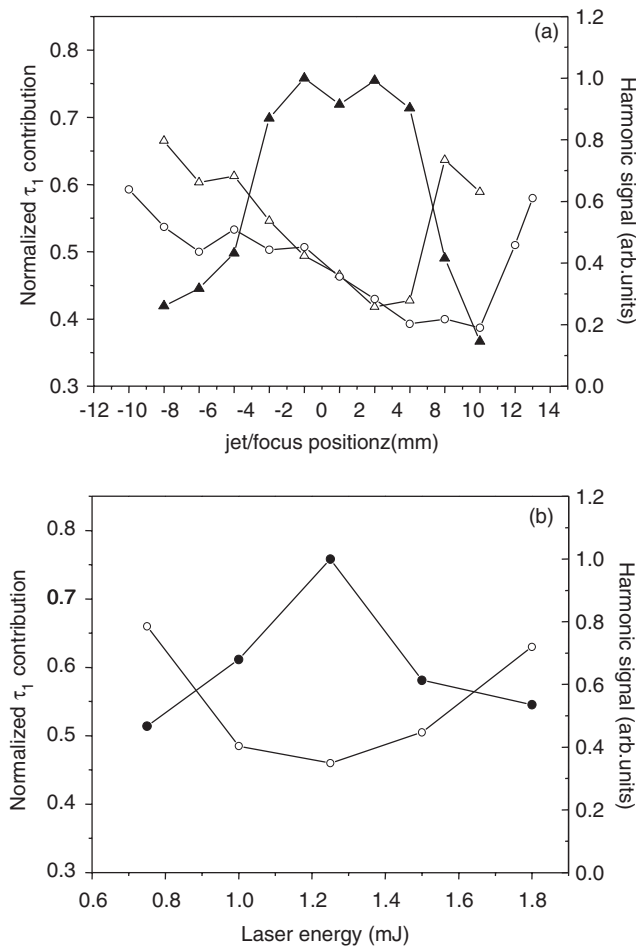


FIG. 7. (a) Contribution of the short trajectory for H17 as a function of the relative jet-to-focus position z at $E=1.25$ mJ and laser diaphragm $d=12.5$ mm (open circle). The same dependence together with the total harmonic signal are shown for a laser energy of 0.85 mJ and $d=14$ mm (respectively, open and full triangles). (b) Contribution of the short trajectory as a function of the laser energy at $z=+2$ mm and $d=12.5$ mm. The total harmonic signal is plotted in full circle. The error bars (not shown) do not exceed 10% of the signal.

appears in the spatial distribution. We attribute the broadening of both the spectral and spatial profiles to the onset of E_2 associated with the τ_2 contribution, whereas the central structure is mainly attributed to E_1 associated with τ_1 . At large $z > +4$ mm, the signal decreases; the profiles are narrow again. The variations of the spectral and spatial profiles are clearly correlated as a function of focusing. First, they reflect how z -dependent phase matching can favor the one or the other contribution: this is the principle of the up-stream control of HHG. Second, for phase-matched emission, they reflect the dependence of the field parameters (chirp) on the laser intensity [10]. A more quantitative analysis is performed in Fig. 7(a), where, together with the integrated signal, we have plotted the relative weight of τ_1 contribution (in percentage of total signal) as a function of the jet to focus position z . The τ_1 weight is obtained from a fit of the 1D radial profile in Fig. 6(b) as a sum of Gaussian/

superGaussian components [see also Fig. 3(a)], and further 2D integration. The τ_1 contribution is slightly higher when the laser is focused before the gas jet (between $z=-10$ mm and $z=0$ mm). For $z > 0$, the τ_2 contribution increases significantly up to 60% of the total signal. This corresponds to a phase matching achieved in the off-axis region of the gas jet, involving a large radial gradient $\alpha_j \vec{\nabla}(I)$ of the laser intensity in Eq. (2), and resulting in an off-axis XUV emission as shown in the spatial profiles. For $z > +10$ mm, the phase matching is again realized preferentially on axis for the τ_1 contribution. We find the same generic behavior using a larger diaphragm and a lower laser energy [triangles in Fig. 7(a)]. We naturally observe that with smaller confocal parameter and intensity, the harmonic signal varies more rapidly with z . Note that the signal dependence indicates that when τ_2 component is phase matched, the total signal is maximum.

In Fig. 7(b), we have plotted the weight of the τ_1 contribution for H17 as a function of the laser energy, for $z=+2$ mm and diaphragm $d=12.5$ mm. The τ_1 contribution slightly dominates at low energy and then decreases when energy increases. When the harmonic total output is optimized ($E=1.25$ mJ), τ_2 becomes dominant. Qualitatively, this variation reflects the intensity-dependent phase matching of τ_1 and τ_2 contributions: the τ_2 component is efficiently phase matched for large radial gradient obtained at high intensity. The further increase of τ_1 contribution may be attributed to the relative degradation of phase matching in the presence of strong ionization and electronic dispersion, which is more critical off axis (large gradients) for τ_2 than it is on axis for τ_1 . The total signal consequently decreases.

D. “Up-” and “down-stream” filtering of one contribution

Our analysis shows how control and filtering of the path contributions can be combined, provided that the generation conditions are properly defined. First we can control the quantum path contributions with the energy of the generating laser. Hence, as previously shown in Fig. 7(b), one may favor either the short or the long trajectory by slightly tuning laser energy. Second, we have an additional control of quantum path contributions with the focusing geometry. To optimize the τ_1 contribution in our geometry, there is advantage to focus the laser close to the gas jet at $z \approx 0$: τ_1 contributes to 50% of the total signal which is close to its maximum. Additionally we have put a diaphragm to suppress the off-axis signal and we found a τ_1 contribution that is around one order of magnitude larger than that of τ_2 . The measured E_1/E_2 ratio for the full HHG beam and for the beam apertured at 1 mm at various focus positions and at two laser energies is reported in Table I. By putting a $\phi=1$ mm diaphragm in the far field, we measure a contribution from the short quantum path that strongly dominates. The above filtering can be used for any harmonic in the plateau region. As a result, almost “pure” τ_1 contribution for a set of harmonic components will be obtained. The long trajectory can also be selected. From Fig. 7(b), we note that τ_2 emission is maximum (60% of the total signal) at $z=+4$ mm, where the har-

TABLE I. Measured ratio E_1/E_2 as a function of jet to focus position at two laser energies. Column A: for the full beam, column B: for the beam apertured at $\phi=1$ mm.

Jet to focus position (mm)	$E=0.85$ mJ		$E=1.25$ mJ	
	A	B	A	B
8	0.7	8	1.5	11
4	0.8	9	0.7	6
0	1	12	1	9
-4	1.1	14	1.6	13
-8	1.2	14	2	16

monic signal is high. We can select τ_2 just by putting a disk inside the beam to stop the on-axis emission where τ_1 is emitted [43].

This analysis is crucial for the generation of clean and intense attosecond pulses. The cutoff region of the harmonic spectrum, where a single path contribute to the emission, has been used to produce isolated attosecond pulses [28,44]. In order to produce shorter and more intense pulses, the plateau region should be used, and this applies both to trains and to isolated pulses obtained through polarization gating [34,45–47]. But the contribution of the two quantum paths, with a relative weight determined both by the atomic dipole and the z -dependent phase matching, directly affects the phase locking between consecutive harmonics [30–32] and blurs the attosecond structure. The generation of a single attosecond burst per half optical cycle thus requires that a single quantum path is selected.

III. CONCLUSION

In summary, our measurements demonstrate that we can now have a complete control of the quantum path contributions in high harmonic generation. The two contributions, τ_1 and τ_2 for, respectively, the short and the long quantum paths, are identified from their strongly correlated properties in the spatial and spectral domains. We have studied them as a function of generation parameter (laser intensity, focus position), emphasizing how phase matching can favor the one or the other contribution. Phase matching therefore serves to the “up-stream” control of the path selection. A simple method of path selection after the generation process or “down-stream” consists in filtering the harmonic emission either in the spatial or in the spectral domain. Short or long quantum path can be, respectively, chosen by adjusting in the far field a diaphragm (on axis emission selected) or a disk (off axis emission selected). This quantum path selection and optimization should lead to the generation of regular and intense attosecond pulses.

ACKNOWLEDGMENTS

This research was supported by the Marie Curie Research Training Network XTRA (Grant No. MRTN-CT-2003-505138), the Integrated Initiative of Infrastructure LASERLAB-EUROPE (Grant No. RII3-CT-2003-506350, FOSCIL) and the New Emerging Science and Technology Contract No. TUIXS (NEST-012843).

-
- [1] P. Salières, A. L’Huillier, Ph. Antoine, and M. Lewenstein, *Adv. At., Mol., Opt. Phys.* **41**, 83 (1999).
 - [2] T. Brabec and F. Krausz, *Rev. Mod. Phys.* **72**, 545 (2000).
 - [3] T. Ditmire, E. T. Gumbrell, R. A. Smith, J. W. G. Tisch, D. D. Meyerhofer, and M. H. R. Hutchinson, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 4756 (1996).
 - [4] L. Le Déroff, P. Salières, and B. Carré, *Opt. Lett.* **23**, 1544 (1998).
 - [5] L. Le Déroff, P. Salières, B. Carré, D. Joyeux, and D. Phalippou, *Phys. Rev. A* **61**, 043802 (2000).
 - [6] H. Merdji, P. Salières, L. Le Déroff, J.-F. Hergott, B. Carré, D. Joyeux, D. Descamps, J. Norin, C. Lyngå, A. L’Huillier, C. G. Wahlström, M. Bellini, and S. Hüller, *Laser Part. Beams* **18**, 495 (2000).
 - [7] R. Bartels, A. Paul, H. Green, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, S. Backus, I. P. Christov, Y. W. Liu, D. Attwood, and C. Jacobsen, *Science* **297**, 376 (2002).
 - [8] M. Bellini, C. Lyngå, A. Tozzi, M. B. Gaarde, T. W. Hänsch, A. L’Huillier, and C. G. Wahlström, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 297 (1998).
 - [9] C. Lyngå, M. B. Gaarde, C. Delfin, M. Bellini, T. W. Hänsch, A. L’Huillier, and C. G. Wahlström, *Phys. Rev. A* **60**, 4823 (1999).
 - [10] P. Salières, B. Carré, L. Le Déroff, F. Grasbon, G. G. Paulus, H. Walther, R. Kopold, W. Becker, D. B. Milosevic, A. Sanpera, and M. Lewenstein, *Science* **292**, 902 (2001).
 - [11] J. Mauritsson, P. Johnsson, R. López-Martens, K. Varju, W. Kornelis, J. Biegert, U. Keller, M. B. Gaarde, K. J. Schafer, and A. L’Huillier, *Phys. Rev. A* **70**, 021801 (2004).
 - [12] J.-F. Hergott, M. Kovačev, H. Merdji, C. Hubert, Y. Mairesse, E. Jean, P. Breger, P. Agostini, B. Carré, and P. Salières, *Phys. Rev. A* **66**, 021801 (2002).
 - [13] E. Takahashi, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, *Opt. Lett.* **27**, 1920 (2002).
 - [14] P. Salières, L. Le Déroff, T. Auguste, P. Monot, P. d’Oliveira, D. Campo, J. F. Hergott, H. Merdji, and B. Carré, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 5483 (1999).
 - [15] D. Descamps, C. Lyngå, J. Norin, A. L’Huillier, C. G. Wahlström, J. F. Hergott, H. Merdji, P. Salières, M. Bellini, and T. W. Hänsch, *Opt. Lett.* **25**, 135 (2000).
 - [16] A. L’Huillier, A. Johansson, J. Norin, J. Mauritsson, and C.-G. Wahlström, *Eur. Phys. J. D* **26**, 91 (2003).
 - [17] P. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban S, T. Mocek, A. Hallou, M. Fajardo, D. Aubert, P. Balcou, F. Burgy, D. Douillet, S. Kazamias, G. de Lacheze-Murel, T. Lefrou, S. le Pape, P. Mercere, H. Merdji, A. S. Morlens, J. P. Rousseau, and C. Valentin, *Nature (London)* **431**, 426 (2004).
 - [18] D. Garzella, T. Hara, B. Carré, P. Salières, T. Shintake, H.

- Kitamura, and M. E. Couprie, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **528**, 502 (2004).
- [19] P. Agostini and L. F. DiMauro, Rep. Prog. Phys. **67**, 813 (2004).
- [20] P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993).
- [21] K. J. Schafer, B. Yang, L. F. DiMauro, and K. C. Kulander, Phys. Rev. Lett. **70**, 1599 (1993).
- [22] M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'Huillier, and P. B. Corkum, Phys. Rev. A **49**, 2117 (1994).
- [23] K. C. Kulander, in *Super-Intense Laser-Atom Physics*, edited by B. Piraux, A. L'Huillier, and K. Rzazewski, Vol. 316 of *NATO Advanced Science Institute, Ser. B: Physics* (Plenum, New York, 1994), p. 95.
- [24] M. B. Gaarde, F. Salin, E. Constant, P. Balcou, K. J. Schafer, K. C. Kulander, and A. L'Huillier, Phys. Rev. A **59**, 1367 (1999).
- [25] M. B. Gaarde and K. J. Schafer, Phys. Rev. A **65**, 031406 (2002).
- [26] Y. Mairesse, A. de Bohan, L. J. Frasinski, H. Merdji, L. C. Dinu, P. Monchicourt, P. Bréger, M. Kovačev, R. Taieb, B. Carré, H. G. Muller, P. Agostini, and P. Salières, Science **302**, 1540 (2003).
- [27] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Bréger, G. Mullot, F. Augé, P. Balcou, H. G. Muller, and P. Agostini, Science **292**, 1689 (2001).
- [28] R. Kienberger, E. Goulielmakis, M. Überacker, A. Baltuška, V. Yakovlev, F. Bammer, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz, Nature (London) **427**, 817 (2004).
- [29] P. Salières, A. L'Huillier, and M. Lewenstein, Phys. Rev. Lett. **74**, 3776 (1995).
- [30] P. Antoine, A. L'Huillier, and M. Lewenstein, Phys. Rev. Lett. **77**, 1234 (1996).
- [31] M. B. Gaarde and K. J. Schafer, Phys. Rev. Lett. **89**, 213901 (2002).
- [32] Y. Mairesse, A. de Bohan, L. J. Frasinski, H. Merdji, L. C. Dinu, P. Monchicourt, P. Bréger, M. Kovačev, T. Auguste, B. Carré, H. G. Muller, P. Agostini, and P. Salières, Phys. Rev. Lett. **93**, 163901 (2004).
- [33] R. López-Martens, K. Varjù, P. Johnsson, J. Mauritsson, Y. Mairesse, P. Salières, M. B. Gaarde, K. J. Schafer, A. Persson, S. Svanberg, C. G. Wahlström, and A. L'Huillier, Phys. Rev. Lett. **94**, 033001 (2005).
- [34] E. Constant *et al.* (unpublished).
- [35] L. C. Dinu, H. G. Muller, S. Kazamias, G. Mullot, F. Augé, P. Balcou, P. M. Paul, M. Kovačev, P. Bréger, and P. Agostini, Phys. Rev. Lett. **91**, 063901 (2003).
- [36] S. A. Aseyev, Y. Ni, L. J. Frasinski, H. G. Muller, and M. Vrakking, Phys. Rev. Lett. **91**, 223902 (2003).
- [37] K. T. Kim, C. M. Kim, M. G. Baik, G. Umesh, and C. H. Nam, Phys. Rev. A **69**, 051805 (2004).
- [38] Ph. Balcou, P. Salières, A. L'Huillier, and M. Lewenstein, Phys. Rev. A **55**, 3204 (1997).
- [39] H. Merdji, J. F. Hergott, M. Kovačev, E. Priori, P. Salières, and B. Carré, Laser Part. Beams **22**, 275 (2004).
- [40] M. Kovačev, S. V. Fomichev, E. Priori, Y. Mairesse, H. Merdji, P. Monchicourt, P. Bréger, J. Norin, A. Persson, A. L'Huillier, C. G. Wahlström, B. Carré, and P. Salières, Phys. Rev. Lett. **95**, 223903 (2005).
- [41] P. Salières, T. Ditmire, M. D. Perry, A. L'Huillier, and M. Lewenstein, J. Phys. B **29**, 4771 (1996).
- [42] D. G. Lee, H. J. Shin, Y. H. Cha, K. H. Hong, J. H. Kim, and C. H. Nam, Phys. Rev. A **63**, 021801 (2001).
- [43] G. Sansone *et al.*, Phys. Rev. A (to be published).
- [44] M. Hentschel, R. Kienberger, C. Spielmann, G. A. Reider, N. Milošević, T. Brabec, P. B. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz, Nature (London) **414**, 509 (2001).
- [45] M. Kovačev, Y. Mairesse, E. Priori, H. Merdji, O. Tcherbakoff, P. Monchicourt, P. Bréger, E. Mével, E. Constant, P. Salières, B. Carré, and P. Agostini, Eur. Phys. J. D **26**, 7982 (2003).
- [46] O. Tcherbakoff, E. Mével, D. Descamps, J. Plumridge, and E. Constant, Phys. Rev. A **68**, 043804 (2003).
- [47] Y. Mairesse, O. Gobert, P. Bréger, H. Merdji, P. Meynadier, P. Monchicourt, M. Perdrix, P. Salières, and B. Carré, Phys. Rev. Lett. **94**, 173903 (2005).

Subcycle dynamics in the laser ionization of molecules

Xinhua Xie,¹ M. Wickenhauser,¹ W. Boutu,² H. Merdji,^{2,3} P. Salières,² and A. Scrinzi^{1,*}

¹*Photonics Institute, Vienna University of Technology, Vienna, Austria*

²*CE Saclay, CEA, 91191 Gif Sur Yvette, France*

³*Stanford PULSE Center, SLAC, Menlo Park, California 94025, USA*

(Received 20 December 2006; revised manuscript received 5 April 2007; published 30 August 2007)

The time and momentum distributions of electron emission from a molecule during a single laser cycle are calculated by solving a two-dimensional time-dependent Schrödinger equation. The momentum distributions strongly depend on the orbital symmetry and orientation of the molecular axis. Field-induced internal dynamics of the molecule can shift electron emission and recollision times through a large part of the laser cycle, which leads to corresponding variations of high-harmonic emission times and to the appearance of even harmonics.

DOI: [10.1103/PhysRevA.76.023426](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.76.023426)

PACS number(s): 42.50.Hz, 34.50.Gb

I. INTRODUCTION

During a single optical cycle of a strong laser pulse, electrons are driven out of a molecule, accelerated, and directed back onto their parent molecule, where they scatter or recombine. This “recollision” process was first introduced to explain the generation of high-harmonic radiation [1,2], but it also leads to the appearance of electron diffraction patterns [3,4], or the expulsion of more electrons and disintegration of the molecule [5]. As electron detachment and recollision occupy only a fraction of the whole cycle, time structures are on the scale of a few hundred attoseconds. These extremely rapid processes can be manipulated by controlling the laser field, and this is being exploited in an increasing number of experiments. From high-harmonic radiation attosecond pulses can be extracted, and efforts are directed to obtaining higher-harmonic intensities and detailed control of the time structure. Harmonic radiation also serves to diagnose recollision itself and to extract information about the structure [6] and dynamics of the target [7,8]. The early focus of recollision experiments was on ionization and harmonic generation with noble gases, where the recollision picture has become firmly established. The chirp of the harmonics can be linked to recollision times [9], and control of the recollision through laser polarization [10,11] and two-color fields [12] have been demonstrated. Now attention is increasingly shifting toward molecules, because of their more complex structure and richer dynamics. The orientation of the molecule relative to the laser field is an additional experimental parameter with which, e.g., the ionization yield can be varied significantly. The basic features of the orientation dependence of total ionization are predicted by the molecular Ammosov-Delone-Krainov (ADK) theory of tunnel ionization [13], which depends only on the asymptotics of the field-free electronic wave function in the field direction.

To determine the momentum distribution of the emitted electrons, knowledge of the wave function in a fixed direction is insufficient: in the simplest case of a diatomic molecule, electrons are released from around both centers, leading to three-dimensional interference patterns that depend on

the relative phases and positions of the two centers [14]. More generally, the emission depends on the nodal structure of the outer electronic orbitals [15]. For the time of electron release, electronic dynamics during the emission process must be taken into consideration. In its usual form, the recollision picture assumes that ionization is a quasistationary process, where at any time the rate is proportional to the tunnel ionization rate for the instantaneous field strength. Because of the strongly nonlinear dependence of ionization on field strength, this implies a sharp maximum of emission at the peak of the laser field. However, ionization can be quasistationary only when the time scales of electronic motion in the system are well separated from the laser time scale. In molecules, this is not generally the case.

In this paper, we investigate the influence of molecular electronic structure and dynamics on electron emission and recollision. We introduce a pseudodetector method to define emission and recollision times as well as electron momenta after emission within the frame of the time-dependent Schrödinger equation (TDSE). For two-dimensional model molecules, we find pronounced effects of orientation on both electron spectra and emission times, due to the orbital symmetry and field-induced intramolecular dynamics.

II. METHOD

To define a time of ionization and an electron spectrum at that time, one needs to distinguish between bound and unbound electrons while the field is present. This is discussed in detail in Ref. [16], where an approximate bound-unbound distinction was introduced. This distinction is applicable in the case of strong fields, while at weaker fields it becomes dependent on details of the approximation, in particular on the gauge used to describe the interaction with the field. For the present work, we avoid this problem by adopting the original idea of the classical recollision model for the time-dependent Schrödinger equation. The electron detachment is determined from the wave function amplitude that we find at distances where the laser force dominates over the molecular potential. We can associate that amplitude with a time of electron emission by propagating it back to near the ion. In this way, we can discuss electron recollision without the need

*scrinzi@tuwien.ac.at

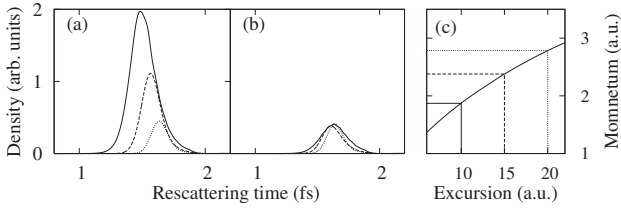


FIG. 1. Time distribution of density of recolliding electrons on target as obtained with probe distances $z_0=10$ (solid line), 15 (dashed line), and 20 a.u. (dotted line). In (a) all recollision momenta are included; in (b) momenta are chosen such that all electrons reach 20 a.u. (c) shows the relation between recollision momentum and excursion amplitude for short trajectories.

to decide whether the electronic wave function ever became unbound or just strongly distorted.

Here we summarize the implementation of the idea and we refer the reader to Ref. [17] for details. At time t_0 the solution $\Psi(\vec{r}, t)$ of the TDSE is multiplied by a probe function $M_{z_0}(\vec{r})$ which is localized at a distance z_0 from the bound system measured in the polarization direction. This probe function approximates a plane where we measure the electron density and momentum as a function of time. M_{z_0} is chosen as a Gaussian function centered around z_0 in the z direction with widths between 3 and 7 a.u. The extension in the perpendicular direction was chosen much wider with a typical value of 20 a.u. The probed part of the wave function $\chi_{t_0}(t_0) = M_{z_0}(\vec{r})\Psi(\vec{r}, t_0)$ is propagated further by the TDSE,

$$i\frac{\partial}{\partial t}\chi_{t_0}(t) = H\chi_{t_0}(t). \quad (1)$$

By integrating over all probe times $\Phi_r(\vec{r}, t) = \int dt_0 \chi_{t_0}(\vec{r}, t)$, one obtains the recolliding part of the wave function, from which the density distributions in time, space, and momentum “on target,” i.e., at $z=0$, are calculated. In Ref. [17] we show that the currents on target only weakly depend on the probe distance z_0 and the width and shape of the mask function. This allows one to identify the times of electron release and recollision. Here one must take into account that with increasing probe distance fewer electrons reach the probe. For emission times corresponding to the “short trajectories” of the classical recollision picture [18] there is a one-to-one correspondence between the classical excursion amplitude and the recollision momentum. By filtering only the highest recollision momenta, one can make sure that all recolliding electrons have passed through the probe. Results for probe distances $z_0=10$, 15, and 20 a.u. are shown in Fig. 1. The calculations were performed for the two-dimensional molecular model described below with a symmetric initial state, laser polarization perpendicular to the molecular axis, 800 nm wavelength, and a peak laser field strength corresponding to intensity 1.4×10^{15} W/cm². When all probed electrons are included, recollision densities are strongly enhanced at early return times for the shorter probe distances. However, these are low-momentum electrons. When one counts high-momentum electrons that pass through all respective barriers, the time distributions nearly agree [Fig.

1(b)]. Low-energy trajectories that miss all probe functions belong to a regime where the concept of recollision ceases to be applicable. Dependencies on the probe width and on the gauge in the TDSE were found to be similarly weak [17].

III. RESULTS AND DISCUSSION

In the following, we study electron emission and recollision using a two-dimensional single-electron model with screened Coulomb potentials

$$H = -\frac{1}{2}[\vec{\nabla}_\rho - \vec{A}(t)]^2 - \sum_{s=\pm 1/2} \frac{c}{\sqrt{a^2 + (\vec{\rho} + s\vec{R})^2}}, \quad (2)$$

with the coordinates $\vec{\rho}=(x, z)$ and the molecular axis at an angle θ : $\vec{R}=(R \sin \theta, R \cos \theta)$ and internuclear separation $|R|=4.4$ a.u. For the potential parameters we chose $c=0.5$, and a was adjusted to obtain an ionization potential of 0.51 a.u. This choice of c implies a symmetric molecule with Coulombic long-range behavior of the potential, while $|R|$ and the ionization potential mimic the overall size and ionization potential of CO₂. The vector potential was chosen in the z direction $\vec{A}=(0, (E_0/\omega_0)\cos \omega_0 t)$ with peak field strength E_0 and center frequency $\omega_0=0.057$ a.u. ($\lambda=800$ nm). For our calculations we can neglect nuclear motion, as electron release and recollision happen during about a laser half cycle of 1.3 fs, which should be compared to typical vibrational periods of 15–25 fs for molecules like CO₂. Although the two-dimensional model precludes quantitative comparisons with experimental data, we will argue below that the mechanism underlying the release dynamics is universal and not specific for our model. The TDSE with the Hamiltonian (2) was solved by a pseudospectral method with a box size of 40 and 120 a.u. in the x and z directions, respectively. The ground and excited initial states were obtained by imaginary time propagation, where for the excited state orthogonality with respect to the previously calculated ground state was imposed. Starting from the ground state, we determine electron momenta through a barrier at $z_0=15$ a.u.

A. Electron momentum distributions

The upper panels of Fig. 2 show the electron momentum distribution for orientations $\theta=0^\circ$, 45° , and 90° in directions parallel (g, \parallel) and perpendicular (g, \perp) to the laser polarization. The distributions are given for the times, when the electron density on the probe reaches its maximum. In qualitative agreement with the molecular ADK theory [13], the ionization yields decrease with increasing angle. The overall shapes of the parallel and perpendicular momentum distributions remain similar and smooth. For parallel alignment, the distribution is shifted to slightly higher momenta, which can be related to a variation in the electron emission time (see the discussion below). In the perpendicular momentum distribution a slight asymmetry appears at 45° . This picture changes drastically when we ionize from a state with ungerade symmetry. We use the first excited state of a system, where for easier comparison with the gerade state we adjust the potential parameter a in the Hamiltonian (2) to obtain the same

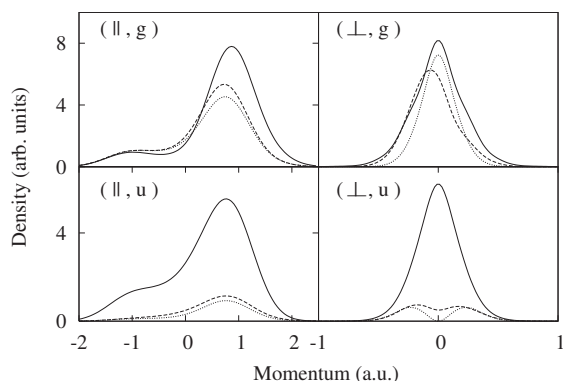


FIG. 2. Dependence of the electron momentum distributions at $z_0=15$ a.u. on molecular orientation and initial state symmetry. Upper panels: parallel (\parallel, g) and perpendicular (\perp, g) momentum distributions with initial gerade states for parallel $\theta=0^\circ$ (solid line), $\theta=45^\circ$ (dashed line), and perpendicular $\theta=90^\circ$ (dotted line) alignment of the molecular axis. Lower panels: same for an antisymmetric initial state.

binding energy of 0.51 a.u. The lower panels of Fig. 2 show the probed spectra for the excited state with ungerade symmetry. In this symmetry, the ionization yield drops more strongly when going from parallel to perpendicular orientation. More importantly, the distribution of perpendicular momenta changes its shape from a smooth bell-shaped distribution to a double-hump distribution with a node for perpendicular momentum $p_\perp=0$. The appearance of this node follows immediately from the antisymmetry perpendicular to the polarization direction.

The suppression of zero perpendicular momentum leads to strong suppression of recollision and high-harmonic generation in addition to the suppression of total ionization. The effect must also be taken into account for a correct interpretation of the experiments [5,19], where double ionization by recolliding electrons was used as a measure of orientation-dependent ionization rates. Some of the molecules investigated there have exact antisymmetries and all have nodal planes which will lead to strong variations of the momentum distributions of the recolliding electrons with molecular orientation. The observed double ionization therefore depends not only on total ionization, but also on the fraction of the returning electrons that contribute to double ionization. For example, while for our model and parallel orientation $\sim 50\%$ of the returning electrons pass through a region around the molecule of twice the internuclear distance, this fraction is only $\sim 10\%$ for the perpendicular orientation.

B. Electron emission and recollision times

The time structure of electron emission is even more deeply connected to molecular orientation and structure. Figure 3 (left panels) shows the density of emitted and recolliding electrons for a range of intensities and parallel alignment of the molecular axis with the laser polarization. The emission time structure varies strongly with intensity. At intensity 5.6×10^{13} W/cm², peak emission approximately coincides with peak field strength, but at intensity 1.3×10^{14} W/cm²

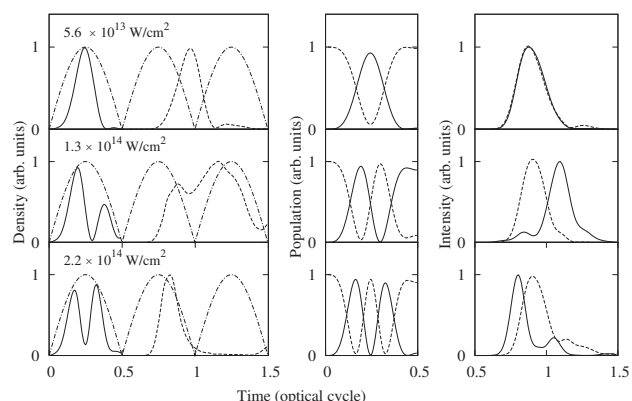


FIG. 3. Time distributions of electron emission and recollision (left panels), state populations (center), and harmonic emission (right) for laser intensities 5.6×10^{13} , 1.3×10^{14} , and 2.2×10^{14} W/cm² (from top to bottom). The dot-dashed lines indicate $|\mathcal{E}(t)|$. Left panels: emission (solid) and recollision (dashed) distributions scaled to maximal values of 1 with the probe located at $z_0=6$ a.u., molecular alignment parallel to the laser field. Center panels: populations of ground state (dashed) and first excited state (solid), parallel alignment. Right panels: combined intensity of harmonics above 90% of the harmonic cutoff energy with parallel (solid) and perpendicular (dashed) alignment.

two emission peaks of different heights appear that are separated by approximately $1/4$ of an optical cycle, and at the largest intensity of 2.2×10^{14} W/cm² two roughly equal peaks with slightly smaller separation appear.

Analyzing the electronic wave function during emission, one finds that the variations are caused by intramolecular electron dynamics induced by the ionizing field. Figure 3 (center panels) shows the populations of the (field-free) ground and first excited states during the ionizing laser half cycle. The laser field induces pronounced Rabi-like oscillations of the populations of the ground and the first excited state. Electron emission predominantly happens when the excited state becomes populated at times when the field is strong. In that way, emission itself becomes modulated by the oscillations between the bound states. The variations in the recollision times match emission, if one takes into account that only emission times corresponding to classically recolliding trajectories can contribute significantly. At the intensity 1.2×10^{14} W/cm², the variation of emission times leads to a strong emphasis of “long trajectories,” i.e., recollisions well after the node of the field. Note that emission can also peak *before* the peak of the laser field, when the excited state population becomes maximal before the peak field. We also investigated the emission time structure for laser polarization perpendicular to the molecular axis, where the excited state is not dipole reachable. As expected, the emission time structure closely follows the field strength and very weakly varies with intensity. Correspondingly, recollision occurs according to the classical model.

The mechanism makes it clear that the modulation of electron emission by field-induced internal dynamics is a universal phenomenon, which is not bound to the specific model used here. In general, the dynamics modifies ionization times when (1) it occurs on a time scale that is com-

rable to the laser optical period and (2) the internal rates are significant compared to the ionization rate. Condition (1) means that there is an electronically excited state at most a few photon energies above the ground state. At a laser photon energy of 1.5 eV corresponding to the ~ 800 nm wavelength, this condition becomes satisfied at large internuclear distances. Condition (2) can always be met by reducing laser intensity. At fixed wavelength, that means that one approaches Keldysh parameters of $\gamma \sim 1$, which is, in fact, where many experiments are being performed. Oscillations between the populations of bound states were reported also at very strong field [20], where, however, the oscillation frequency far exceeds the laser frequency and no observable modulation of the emission results.

C. Experimental signatures

The most sensitive experimental signature of recollision is in high-harmonic emission, where recollision momenta are closely linked to recollision times [8,9]. The experimental signature of field-induced intramolecular dynamics is the dependence on the laser intensity and orientation of the molecular axis. The right-hand panels in Fig. 3 show that the single-atom harmonic response in the energy range above 90% of the harmonic cutoff energy closely follows the corresponding recollision density distribution. The figures also contain the harmonic intensities for perpendicular orientation, which remain independent of intensity. Recent experimental work has revealed a similar change of the harmonic emission profile as a function of intensity and orientation of the molecular axis [21].

Another observable effect of the internal dynamics is the transient appearance of even harmonics. Between subsequent recollisions, the system evolves according to the field-induced dynamics. In our case, Rabi-like oscillations between the gerade ground and the ungerade excited state lead to variations of the electron density. At intensities where the ratio of the laser period to the field-induced internal oscillation period approaches an even number, the system returns to the same state at each subsequent recollision. Any asymmetry of this state will cause even harmonics. As the internal dynamics depends on laser intensity, the even harmonics show a resonancelike dependence on pulse intensity. For our model system, parallel alignment, a pulse duration of 15 fs, and intensity of 5.6×10^{13} W/cm², we find even harmonic peaks with up to 3–8% of the peak height of the neighboring odd harmonic peaks. For perpendicular alignment there are no even harmonics. Finally, switching of recollisions between short and long trajectories (cf. Fig. 3) changes the phase-matching conditions. Depending on the position of the focus before or after the interaction region with the gas, complementary effects of the internal dynamics should be observed. A detailed investigation of these phenomena is deferred to future work.

ACKNOWLEDGMENT

This work was supported by the Austrian Research Fund project F016 and in part by the U.S. Department of Energy, through the Stanford PULSE Center at SLAC.

-
- [1] P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993).
 - [2] K. C. Kulander, K. J. Schafer, and J. L. Krause, in *Proceedings of the Workshop, Super Intense Laser Atom Physics (SILAP) III*, edited by B. Piroux (Plenum, New York, 1993).
 - [3] H. Niikura *et al.*, Nature (London) **417**, 917 (2002).
 - [4] M. Lein, N. Hay, R. Velotta, J. P. Marangos, and P. L. Knight, Phys. Rev. A **66**, 023805 (2002).
 - [5] A. S. Alnaser *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 163002 (2003).
 - [6] J. Itatani *et al.*, Nature (London) **432**, 867 (2004).
 - [7] H. Niikura *et al.*, Nature (London) **421**, 826 (2003).
 - [8] S. Baker *et al.*, Science **312**, 424 (2006).
 - [9] Y. Mairesse *et al.*, Science **302**, 1540 (2003).
 - [10] I. Mercer *et al.*, Phys. Rev. Lett. **77**, 1731 (1996).
 - [11] G. G. Paulus *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 3791 (2000).
 - [12] T. Remetter *et al.*, Nat. Phys. **2**, 323 (2006).
 - [13] X. M. Tong, Z. X. Zhao, and C. D. Lin, Phys. Rev. A **66**, 033402 (2002).
 - [14] J. Muth-Böhm, A. Becker, and F. H. M. Faisal, Phys. Rev. Lett. **85**, 2280 (2000).
 - [15] T. K. Kjeldsen, C. Z. Bisgaard, L. B. Madsen, and H. Stapelfeldt, Phys. Rev. A **71**, 013418 (2005).
 - [16] O. Smirnova, M. Spanner, and M. Ivanov, J. Phys. B **39**, S307 (2006).
 - [17] X. Xie, G. Jordan, M. Wickenhauser, and A. Scrinzi, J. Mod. Opt. **54**, 999 (2007).
 - [18] P. Antoine, A. L'Huillier, and M. Lewenstein, Phys. Rev. Lett. **77**, 1234 (1996).
 - [19] C. D. Lin, X. M. Tong, and Z. X. Zhao, J. Mod. Opt. **53**, 21 (2006).
 - [20] T. Zuo and A. D. Bandrauk, Phys. Rev. A **54**, 3254 (1996).
 - [21] W. Boutu *et al.* (unpublished).

Isolated attosecond pulses using a detuned second-harmonic field

Hamed Merdji,^{1,2,*} Thierry Auguste,¹ Willem Boutu,¹ J.-Pascal Caumes,¹ Bertrand Carré,¹ Thomas Pfeifer,^{3,4} Aurélie Jullien,^{3,4} Daniel M. Neumark,^{3,4} and Stephen R. Leone^{3,4}

¹Service des Photons Atomes et Molécules, Commissariat à l'Energie Atomique, Centre d'Etudes de Saclay, Bâtiment 522, 91191 Gif sur Yvette, France

²Stanford PULSE Center, SLAC, Menlo Park, California 94025, USA

³Departments of Chemistry and Physics, University of California, Berkeley, California 94720, USA

⁴Chemical Sciences Division, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California 94720, USA

*Corresponding author: merdji@drecam.cea.fr

Received July 31, 2007; revised September 21, 2007; accepted September 24, 2007;
posted September 25, 2007 (Doc. ID 85738); published October 22, 2007

Calculations are presented for the generation of an isolated attosecond pulse in a multicycle two-color strong-field regime. We show that the recollision of the electron wave packet can be confined to half an optical cycle using pulses of up to 40 fs in duration. The scheme is proven to be efficient using two intense beams, one producing a strong field at ω and the other a strong field detuned from 2ω . The slight detuning $\delta\omega$ of the second harmonic is used to break the symmetry of the electric field over many optical cycles and provides a coherent control for the formation of an isolated attosecond pulse. © 2007 Optical Society of America

OCIS codes: 190.2620, 190.4160, 190.7110, 320.7110.

High-order harmonics generation (HHG) of intense laser pulses in gases is attracting much attention due to both fundamental and applied interests. One of the most attractive properties of the HHG source is the generation of attosecond pulses. This field has been growing spectacularly (for reviews see [1,2]). Trains of attosecond pulses are naturally produced in the HHG process, whereas the generation of a single or isolated attosecond pulse is more challenging. Isolated attosecond pulses have been, however, achieved using absolute phase-stabilized few-optical-cycle state-of-the-art laser systems. The methods rely either on the laser intensity [3] or ellipticity (polarization state) [4,5] dependencies of the harmonic emission. Another approach involves control of the wave packet recollision using a two-color field. Proposals based on a mixing scheme of a strong fundamental field and a weak [6] or strong [7] second-harmonic field have been investigated computationally. Experimental indications of an isolated attosecond pulse have been observed in the latter scheme explored experimentally. These schemes are very promising but require very short pulses (<12 fs) except if harmonic heterodyning with a weak lower frequency field is used [8], which is, however, more difficult to produce experimentally than the second harmonic.

In this Letter, we propose to generate single attosecond pulses in the long optical cycle regime by mixing the fundamental field to its detuned second harmonic. To illustrate the principle, we perform one-dimension quantum mechanical calculations using an argon atom with a smoothed Coulomb potential. Our approach is based on the numerical solution of the time-dependent Schrödinger equation. The calculated attosecond time structure is shown in Fig. 1a when only the fundamental (ω_1) is present. The laser intensity is constant. We see that an attosecond pulse

is emitted every $1/2$ optical cycle. This reflects the symmetry of the HHG process. In Fig. 1b we perform the same calculations but add an intense spectrally detuned second-harmonic field. The detuning is chosen so that $\omega_2 = \omega_1(2 + 1/N)$, with $N=5$. Due to the new periodicity of the electric field we show that an attosecond pulse is now emitted every $5/2$ optical cycle. This property of HHG can be used to isolate a single attosecond pulse. Indeed, if the laser envelope duration is of the same order as (or a few times) the delay between two consecutive attosecond pulses, the strong intensity dependence of the HHG process will allow the isolation of a single attosecond pulse.

This is shown in Fig. 2 with $N=5.5$ and with an envelope of ten optical cycles for both the fundamental and the detuned second-harmonic fields. The time-dependent laser pulse envelope has a $\sin^2(\pi t/2\tau_L)$ shape, where t is time and τ_L the FWHM. The intensities of the fundamental and the second-harmonic fields are 2×10^{14} and 10^{14} W/cm², respectively. The electric field symmetry is strongly broken so that the recollision of the most energetic part of the wave packet is now confined to half an optical cycle within the full envelope. The calculation shows an isolated attosecond pulse (80 as) with a large spectral bandwidth of 24 eV centered at 49ω (see below). In the simulation the strong field regime produced by the two colors plays a significant role. The population of the ground state is plotted in Fig. 2. The ionization is taken directly from the resolution of the Schrödinger equation. The ground state is totally depleted after the maximum of the electric field so that no harmonic emission is allowed on the trailing edge of the pulse. It should be noted that this effect has recently been proposed to generate a single attosecond pulse [9]. In the present case the ground state population is still high (30%) just before the emission of the attosecond

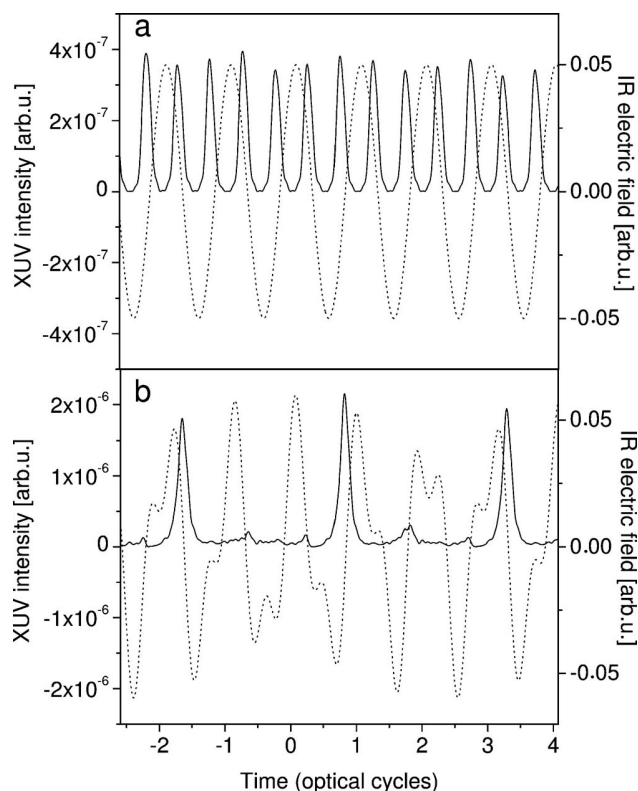


Fig. 1. Time profiles with only the a, fundamental (800 nm) ω_1 and b, when mixing the fundamental and its detuned second harmonic $\omega_2=2.2\omega_1$. The laser intensity is constant. The relative phase between the two fields is 0.64π . Dotted curves: total generating electric field. Solid curves: calculations of the harmonic emission in argon using a numerical filter centered at $26\omega_1$ with a 20 eV bandwidth.

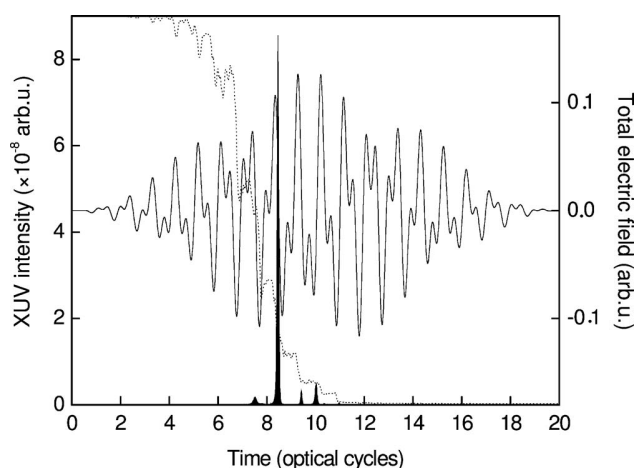


Fig. 2. Driving electric field of the two-color detuned scheme (solid curve) with $\omega_2=2.18\omega_1$. Calculation of the harmonic emission in argon (shaded area curve) using a numerical spectral filter between from $41\omega_1$ to above the cutoff (see text). The fundamental field is centered at 800 nm . Both fields have an envelope of ten optical cycles (27 fs , FWHM). The relative phase of the two fields is equal to 0 . Dotted curve: normalized population of the ground state. The population is evolving from 1 at $t=0$ to 0 at $t=20$ optical cycles.

pulse so that the gating method is quite efficient. Calculations (not shown here) at lower intensity (10^{14} and $5 \times 10^{13}\text{ W/cm}^2$ for the fundamental and the second harmonic, respectively) indicate that when the medium is not depleted we can obtain secondary attosecond pulses in the trailing edge of the pulse. The phase difference between the two colors is also a very important parameter and should be adjusted with interferometric stability in an experiment. Our calculations show that a phase change from 0 to $\pi/4$ affects the time profile of the radiation. Indeed a second attosecond pulse is emitted with $\sim 40\%$ of the intensity of the main pulse. The method also relies on the phase slippage between the two colors in the generating medium, which should be kept below $\pi/10$. This can be matched, for example, in a millimeter length, few tens of torr of argon gas medium.

The relative phase of the two pulses also plays a role in controlling the wave packet dynamics. Indeed the two-color electric fields add coherently so that the most energetic single wave packet recollision is observed for the highest field acceleration. This can be adjusted by the relative phase of the fields so that the recollision occurs close to the maximum of the optical pulse envelope. In that sense this technique is more efficient than the intensity [3] or polarization gating [4,5] methods where no coherent control on the attosecond electron wave packet properties is applied. The constructive coherent sum of the fields leads to a much higher electron recollision kinetic energy so that an extension of the high harmonic plateau occurs. This is illustrated in Fig. 3 where the spectrum is plotted for the single color and the two-color-detuned schemes. The cutoff is significantly extended from harmonic 39 to harmonic 57. This is consistent with the additional kinetic energy of the returning electron wave packet provided by the detuned second-harmonic strong field. We note that in the large extended plateau region the spectrum shows less modulation than the single color scheme. This is the region where the numerical spectral filter is applied to isolate the attosecond pulse.

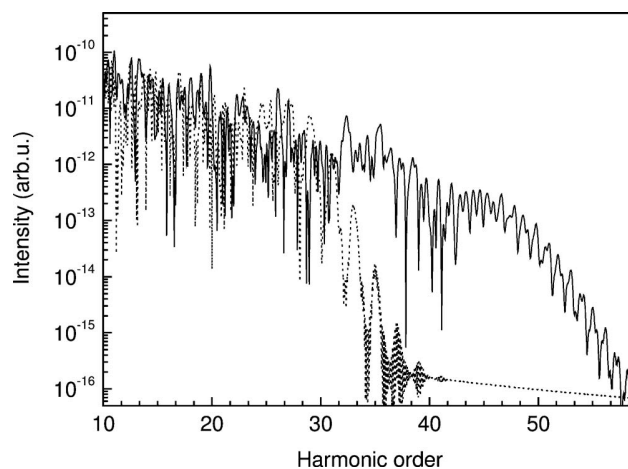


Fig. 3. Total harmonic spectra extracted from the quantum-mechanical calculations in argon shown in Fig. 2 (same parameters). Dotted curve: spectra generated using only the ω_1 field. Solid curve: spectra generated in the mixing scheme with ω_1 and $\omega_2=2.18\omega_1$.

We propose now to extend the technique to longer laser pulse duration available in most laboratories. Figure 4 shows quantum-mechanical calculations in argon using 15 optical cycles pulses (40 fs). The results have been obtained after optimizing the detuning and the phase difference between the two beams. The best case shown here is $N=5$ and $\phi=0.64\pi$. The total electric field exhibits a clear modulation of the envelope with a period of 5 optical cycles and the inset shows that the intraoptical cycle symmetry is broken. The calculations reveal a high-contrast isolated attosecond pulse generated just before the maximum of the laser envelope. The small satellite pulses exhibit intensities below 5% of the main peak.

Here, the optimization of the parameters (dephasing and detuning) of isolated attosecond pulses has been done manually. However these parameters can be adjusted in an experiment by utilizing closed loop quantum control of the attosecond pulse generation. These two parameters can be inserted into an evolutionary algorithm [10] in order to shape the attosecond pulse structure. We also note that the method can use a detuning either of the second harmonic or of the fundamental field; the symmetry will be broken in either case. The detuning of the 800 nm wavelength is easier to produce using, for example, nonlinear phase modulation effects. The technique can be implemented on high energy lasers so that controllable single attosecond pulses in the microjoule range can be generated.

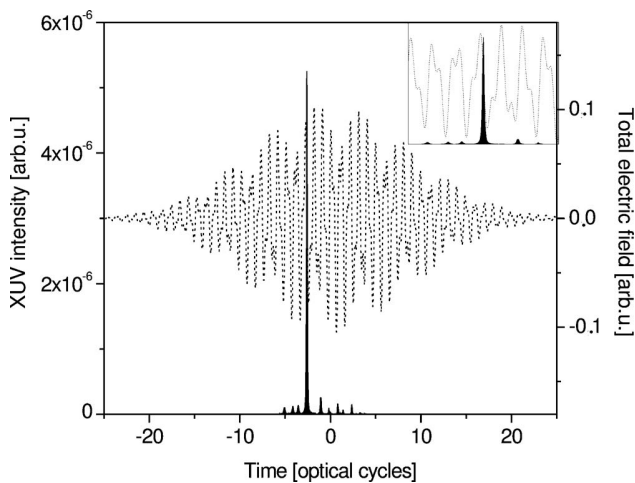


Fig. 4. Calculations of the attosecond pulses produced with the two-color mixing scheme for ω_1 and $\omega_2=2.2\omega_1$. Both driving fields have an envelope of 15 optical cycles (FWHM). The detuned-second-harmonic field has an additional phase of $\phi=0.64\pi$. Dotted curve: total generating electric field. Shaded area curve: attosecond time structure of the harmonic emission. The inset shows the total electric field and the isolated attosecond pulse over a few-optical-cycle window.

Finally the method can be of general use in other strong field experiments. In high harmonic generation we have shown that a symmetry-broken strong field provides a way to generate isolated attosecond pulses with long optical pulses. Another application can be the possibility of controlling the recollision probability of a wave packet in a pump-probe experiment. The two fields and their relative properties can be tuned to “guide” a single attosecond wave packet with a controllable kinetic energy back toward the ground state. This could add considerable flexibility in the application of a wave packet as a probe of a molecular system [11,12].

This research was supported by the New Emerging Science and Technology European contract TUIXS (NEST-012843), by the U.S. Department of Energy, through the Stanford PULSE Center and a MURI program from the Air Force Office of Scientific Research, contract FA9550-04-1-0242. Portions of the laboratory at Berkeley were supported by the Director, Office of Science, Office of Basic Energy Sciences, of the U.S. Department of Energy under contract DE-AC02-05CH11231. T. Pfeifer acknowledges support of a Feodor Lynen Fellowship of the Alexander von Humboldt Foundation.

References

1. P. Agostini and L. F. DiMauro, *Rep. Prog. Phys.* **67**, 813 (2004).
2. P. B. Corkum and F. Krausz, *Nat. Phys.* **3**, 381 (2007).
3. M. Hentschel, R. Kienberger, C. Spielmann, G. A. Reider, N. Milošević, T. Brabec, P. B. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz, *Nature* **414**, 509 (2001).
4. M. Ivanov, P. B. Corkum, T. Zuo, and A. Bandrauk, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 2933 (1995).
5. I. J. Sola, E. Mevel, L. Elouga, E. Constant, V. Strelkov, L. Poletto, P. Villoresi, E. Benedetti, J.-P. Caumes, S. Stagira, C. Vozzi, G. Sansone, and M. Nisoli, *Nat. Phys.* **2**, 319 (2006).
6. T. Pfeifer, L. Gallmann, M. J. Abel, D. M. Neumark, and S. R. Leone, *Opt. Lett.* **31**, 975 (2006).
7. Y. Oishi, M. Kaku, A. Suda, F. Kannari, and K. Midorikawa, *Opt. Express* **14**, 7230 (2006).
8. T. Pfeifer, L. Gallmann, M. J. Abel, P. M. Nagel, D. M. Neumark, and S. R. Leone, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 163901 (2006).
9. W. Cao, P. Lu, P. Lan, X. Wang, and G. Yang, *Phys. Rev. A* **74**, 063821 (2006).
10. R. Bartels, S. Backus, E. Zeek, L. Misoguti, G. Vdovin, I. P. Christov, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, *Nature* **406**, 164 (2000).
11. S. Baker, J. S. Robinson, C. A. Haworth, H. Teng, R. A. Smith, C. C. Chirila, M. Lein, J. W. G. Tisch, and J. P. Marangos, *Science* **312**, 424 (2006).
12. J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler, Hiromichi Niikura, H. Pepin, J. C. Kieffer, P. B. Corkum, and D. M. Villeneuve, *Nature* **432**, 7019 (2004).

Bibliographie

- Alnaser, A., Osipov, T., Benis, E., Wech, A., Shan, B., Cocke, C., Tong, X., and Lin, C. (2003). Rescattering double ionization of D_2 and H_2 by intense laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :163002. [90](#)
- Ammonosov, M., Delone, N., and Krainov, V. (1986). Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. *Sov. Phys. JETP*, 64 :1191. [85](#)
- Antoine, P., L’Huillier, A., and Lewenstein, M. (1996a). Attosecond pulse trains using high-order harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 77(7) :1234–1237. [88](#)
- Antoine, P., L’Huillier, A., Lewenstein, M., Salières, P., and Carré, B. (1996b). Theory of high-order harmonic generation by an elliptically polarized laser field. *Phys. Rev. A*, 53(3) :1725–1745. [35](#)
- Baker, S., Robinson, J., Haworth, C., Teng, H., Smith, R., Chirila, C., Lein, M., Tisch, J., and Marangos, J. (2006). Probing proton dynamics in molecules on a attosecond time scale. *Science*, 312 :424. [91](#), [156](#)
- Balcou, P., Salieres, P., L’Huillier, A., and Lewenstein, M. (1997). Generalized phase-matching conditions for high harmonics : The role of field-gradient forces. *Phys. Rev. A*, 55(4) :3204–3210. [20](#), [21](#)
- Baltuska, A., Udem, T., Uiberacker, M., Hentschel, M., Goulielmakis, E., Gohle, C., Holzwarth, R., Yakovlev, V. S., Scrinzi, A., Hansch, T. W., and Krausz, F. (2003). Attosecond control of electronic processes by intense light fields. *Nature*, 421(6923) :611–615. [160](#)
- Benis, E., Charalambidis, D., Kitsopoulos, T., Tsakiris, G., and Tzallas, P. (2006). Two-photon double ionization of rare gases by a superposition of harmonics. *Phys. Rev. A*, 74 :051402. [10](#), [30](#)
- Born, M. and Wolf, E. (1989). *Principles of optics*. Pergamon Press, 6 edition. [37](#)

- Boyko, O., Planchon, T., Mercère, P., Valentin, C., and Balcou, P. (2005a). Adaptive shaping of a focused intense laser beam into a doughnut mode. *Optics Comm.*, 246 :131–140. [36](#)
- Boyko, O., Planchon, T., Valentin, C., Douillet, D., Reitze, D., Kazamias, S., Sebban, S., and Balcou, P. (2005b). Spectral tailoring of high harmonic generation by adaptative methods. *Laser Physics*, 15(4) :616–619. [33](#)
- Boyko, O., Reitze, D., Kazamias, S., Planchon, T., Valentin, C., and Balcou, P. (2005c). Optimisation de la génération d’harmoniques d’ordre élevé à l’aide d’une optique et d’un modulateur acousto-optique. *J. Phys. IV*, 127 :99–103. [76](#), [77](#)
- Brabec, T. and Krausz, F. (2000). Intense few-cycle laser fields : Frontiers of nonlinear optics. *Rev. Mod. Phys.*, 72 :545. [9](#)
- Budil, K. S., Salieres, P., Perry, M. D., and L’Huillier, A. (1993). Influence of ellipticity on harmonic generation. *Phys. Rev. A*, 48(5) :R3437–R3440. [35](#)
- Burnett, K., Reed, V. C., Cooper, J., and Knight, P. L. (1992). Calculation of the background emitted during high-harmonic generation. *Phys. Rev. A*, 45(5) :3347–3349. [92](#)
- Chaloupka, J., Fisher, Y., Kessler, T., and Meyerhofer, D. (1997). Single-beam, ponderomotive-optical trap for free electrons and neutral atoms. *Opt. Lett.*, 22 :1021. [35](#)
- Chaloupka, J. and Meyerhofer, D. (1999). Observation of electron trapping in an intense laser beam. *Phys. Rev. Lett.*, 83(22) :4538–4541. [35](#)
- Chapman, H. N., Barty, A., Bogan, M. J., Boutet, S., Frank, M., Hau-Riege, S. P., Marchesini, S., Woods, B. W., Bajt, S., Benner, W. H., London, R. A., Plonjes, E., Kuhlmann, M., Treusch, R., Dusterer, S., Tschentscher, T., Schneider, J. R., Spiller, E., Moller, T., Bostedt, C., Hoener, M., Shapiro, D. A., Hodgson, K. O., van der Spoel, D., Burmeister, F., Bergh, M., Caleman, C., Huidt, G., Seibert, M. M., Maia, F. R. N. C., Lee, R. W., Szoke, A., Timneanu, N., and Hajdu, J. (2006). Femtosecond diffractive imaging with a soft-x-ray free-electron laser. *Nat Phys*, 2(12) :839–843. [75](#)
- Chin, S. L., Linag, Y., Decker, J., Ilkov, F., and Ammonosov, A. (1992). Tunnel ionization of diatomic molecules by an intense CO₂ laser. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys*, 25 :L249–255. [85](#)

- Christov, I. P., J. Zhou, Peatross, J., Rundquist, A., Murnane, M. M., and Kapteyn, H. C. (1996). Nonadiabatic effects in high-order harmonic generation with ultrashort pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 77(9) :1743–1746. [18](#)
- Constant, E., Garzella, D., Breger, P., Mével, E., Dorrer, C., Blanc, C. L., Salin, F., and Agostini, P. (1999). Optimizing high harmonic generation in absorbing gases : model and experiment. *Phys. Rev. Lett.*, 82(8) :1668–1671. [23](#), [24](#)
- Corkum, P. B. (1993). Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 71(13) :1994–1997. [81](#), [82](#)
- Corkum, P. B., Burnett, N. H., and Ivanov, M. Y. (1994). Subfemtosecond pulses. *Opt. Lett.*, 19 :1870. [35](#)
- Cornaggia, C. and Hering, P. (2000). Nonsequential double ionization of small molecules induced by a femtosecond laser field. *Phys. Rev. A*, 62 :023403. [85](#)
- Corsi, C., Pirri, A., Sali, E., Tortora, A., and Bellini, M. (2006). Direct interferometric measurement of the atomic dipole phase in high-order harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.*, 97 :023901. [86](#)
- Daido, H. (2002). Review of soft x-ray laser researches and developments. *Rep. Prog. Phys.*, 65 :1513–1576. [17](#)
- DeGrazia, M. (2007). PhD thesis, Université Paris XI. [10](#)
- Dinu, L. C., Muller, H. G., Kazamias, S., Mullot, G., Audebert, F., Balci, P., Paul, P. M., Kovacev, M., Breger, P., and Agostini, P. (2003). Measurement of the subcycle timing of attosecond xuv bursts in high-harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.*, 91(6) :063901. [116](#)
- Drescher, M., Hentschel, M., Kienberger, R., Uiberacker, M., Yakovlev, V., Scrinzi, A., Westerwalbesloh, T., Kleineberg, U., Heinzmann, U., and Krausz, F. (2002). Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy. *Nature*, 439 :803. [11](#)
- Eichmann, H., Egbert, A., Nolte, S., Momma, C., Wellegehausen, B., Becker, W., Long, S., and McIver, J. (1995). Polarization-dependent high-order two-color mixing. *Phys. Rev. A*, 51(5) :R3414. [18](#), [107](#)
- Elleaume, P., Colson, W., Pellegrini, C., and Renieri, A. (1990). *Laser Handbook*, volume 6. Elsevier Sciences. [17](#)

- Ferray, M., L’Huillier, A., Li, X. F., Lompré, L. A., Mainfray, G., and Manus, C. (1988). Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. *J. Phys. B*, 21 :L31. [9](#), [81](#)
- Friedrich, B. and Herschbach, D. (1991). On the possibility of orienting rotationally cooled polar molecules in an electric field. *Z. Phys. D : Atoms, Molecules and Clusters*, 18 :153. [101](#)
- Friedrich, B. and Herschbach, D. (1995a). Alignment and trapping of molecules in intense laser fields. *Phys. Rev. Lett.*, 74(23) :4623. [102](#), [104](#)
- Friedrich, B. and Herschbach, D. (1995b). Polarization of molecules induced by intense laser fields. *J. Phys. Chem.*, 99 :15686. [102](#)
- Fromager, M. and Aït-Ameur, K. (2001). Transformation of an elliptic into a circular beam using a diffractive binary optic. *optics Comm.*, 190. [35](#)
- Gibson, E., Paul, A., Wagner, N., Tobey, R., Backus, S., Christov, I., Murnane, M., and Kapteyn, H. (2004). High-order harmonic generation up to 250 eV from highly ionized argon. *Phys. Rev. Lett.*, 92(3) :033001. [73](#)
- Guo, C., Li, M., Nibarger, J., and Gibson, G. (1998). Single and double ionization of diatomic molecules in strong laser fields. *Phys. Rev. A*, 58(6) :4271–4274. [85](#)
- Hergott, J.-F. (2001). *Optimisation de la génération d’harmoniques d’ordre élevé et application à l’interférométrie UVX résolue en temps*. PhD thesis, Université Paris XI Orsay. [19](#), [20](#)
- Hergott, J.-F., Kovacev, M., Merdji, H., Hubert, C., Mairesse, Y., Jean, E., Breger, P., Agostini, P., Carre, B., and Salieres, P. (2002). Extreme-ultraviolet high-order harmonic pulses in the microjoule range. *Phys. Rev. A*, 66(2) :021801. [10](#), [26](#), [32](#)
- Itatani, J., Levesque, J., Zeidler, D., Niikura, H., Pepin, H., Kieffer, J. C., Corkum, P. B., and Villeneuve, D. M. (2004). Tomographic imaging of molecular orbitals. *Nature*, 432(7019) :867–871. [12](#), [96](#), [97](#), [99](#), [140](#), [149](#), [150](#), [151](#)
- Jones, D., Diddams, S., Ranka, J., Stentz, A., Windeler, R., Hall, J., and Cundiff, S. (2000). Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis. *Science*, 288 :635–639. [160](#)
- Kanai, T., Minemoto, S., and Sakai, H. (2005). Quantum interference during high order harmonic generation from aligned molecules. *Nature*, 435(03577) :470–474. [96](#), [122](#), [124](#)

- Kazamias, S. and Balcou, P. (2004). Intrinsic chirp of attosecond pulses : Single-atom model versus experiment. *Phys. Rev. A*, 69(6) :063416. [86](#)
- Keldysh, L. (1965). Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Sov. Phys. JETP*, 20 :1307. [83](#)
- Kienberger, R., Goulielmakis, E., Uiberacker, M., Baltuska, A., Yakovlev, V., Bammer, F., Scrinzi, A., Westerwalbesloh, T., Kleineberg, U., Heinzmann, U., Drescher, M., and Krausz, F. (2004). Atomic transient recorder. *Nature*, 427 :817. [34](#), [90](#)
- Kim, I., Kim, C., Kim, H., Lee, G., Lee, Y., Park, J., Cho, D., and Nam, C. (2005). Highly efficient high-harmonic generation in an orthogonally polarized two-color laser field. *Phys. Rev. Lett.*, 94 :243901. [107](#)
- Kruit, P. and Read, F. (1983). Magnetic field paralleliser for 2 pi electron-spectrometer and electron-image magnifier. *J. Phys. E Sci. Instrum.*, 16 :313. [110](#)
- Larsen, J., Hald, K., Bjerre, N., and Stapelfeldt, H. (2000). Three dimensional alignment of molecules using elliptically polarized laser fields. *Phys. Rev. Lett.*, 85(12) :2470. [107](#)
- Le, A.-T., Tong, X.-M., and Lin, C. (2006). Evidence of two-center interference in high-order harmonic generation from CO₂. *Phys. Rev. A*, 73 :041402. [96](#), [137](#)
- Le, V.-H., Le, A.-T., Xie, R.-H., and Lin, C. (2007). Theoretical analysis of dynamic chemical imaging with lasers using high-order harmonic generation. *submitted*. [151](#), [152](#)
- Lee, D., Shin, H., Cha, Y., Hong, K., Kim, J.-H., and Nam, C. (2001). Selection of high-order harmonics from a single quantum path for the generation of an attosecond pulse train. *Phys. Rev. A*, 63 :021801. [89](#)
- Lee, K., Villeneuve, D., Corkum, P., Stolow, A., and Underwood, J. (2006). Field-free three-dimensional alignment of polyatomic molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 97 :173001. [107](#)
- Lein, M. (2005). Attosecond probing of vibrational dynamics with high-harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.*, 94 :053004. [90](#)

- Lein, M., Corso, P. P., Marangos, J. P., and Knight, P. L. (2003). Orientation dependence of high-order harmonic generation in molecules. *Phys. Rev. A*, 67(2) :023819. [96](#)
- Lein, M., Hay, N., Velotta, R., Marangos, J. P., and Knight, P. L. (2002a). Interference effects in high-order harmonic generation with molecules. *Phys. Rev. A*, 66(2) :023805. [126](#), [127](#), [143](#)
- Lein, M., Hay, N., Velotta, R., Marangos, J. P., and Knight, P. L. (2002b). Role of the intramolecular phase in high-harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.*, 88(18) :183903. [95](#), [126](#)
- Levesque, J. (2006). *Etude de la structure électronique d'atomes et de molécules au moyen de la génération d'harmoniques d'ordres élevés*. PhD thesis, Université du Québec, INRS Energie, Matériaux et Télécommunications. [100](#)
- Levesque, J., Zeidler, D., Marangos, J., Corkum, P., and Villeneuve, D. (2007). High harmonic generation and the role of atomic orbital wave functions. *Phys. Rev. Lett.*, 98 :183903. [151](#)
- Lewenstein, M., Balcou, P., Ivanov, M. Y., L'Huillier, A., and Corkum, P. B. (1994). Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Phys. Rev. A*, 49 :2117. [81](#), [83](#), [92](#)
- Lewenstein, M., Salieres, P., and L'Huillier, A. (1995). Phase of the atomic polarization in high-order harmonic generation. *Phys. Rev. A*, 52(6) :4747–4754. [20](#), [88](#)
- L'Huillier, A. and Balcou, P. (1993). High-order harmonic generation in rare gases with a 1 ps 1054 nm laser. *Phys. rev. Lett.*, 70(6) :774–777. [18](#)
- L'Huillier, A., Balcou, P., Candel, S., Schafer, K., and Kulander, K. (1992). Calculations of high-order harmonic-generation processes in xenon at 1064 nm. *Phys. Rev. A*, 46(5) :2778–2790. [19](#)
- Liang, Y., Augst, S., Chin, S., Beaudoin, Y., and Chaker, M. (1994). High harmonic generation in atomic and diatomic molecular gases using intense picosecond laser pulses-a comparison. *J. Phys. B.*, 27 :5119–5130. [81](#)
- Litvinyuk, I., Lee, K., Dooley, P., Rayner, D., Villeneuve, D., and Corkum, P. (2003). Alignment-dependent strong field ionization of molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 90(23) :233003. [122](#)

- Loesch, H. and Remscheid, A. (1990). Brute force in molecular reaction dynamics : A novel technique for measuring steric effects. *J. Chem. Phys.*, 93 :4779. [101](#)
- Lopez-Martens, R., Varju, K., Johnsson, P., Mauritsson, J., Mairesse, Y., Salieres, P., Gaarde, M. B., Schafer, K. J., Persson, A., Svanberg, S., Wahlstrom, C.-G., and L’Huillier, A. (2005). Amplitude and phase control of attosecond light pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 94(3) :033001. [11](#), [89](#), [158](#)
- Lynga, C., Gaarde, M. B., Delfin, C., Bellini, M., Hansch, T. W., L’Huillier, A., and Wahlstrom, C.-G. (1999). Temporal coherence of high-order harmonics. *Phys. Rev. A*, 60(6) :4823–4830. [89](#)
- Lynga, C., L’huillier, A., and Wahlstrom, C.-G. (1996). High-order harmonic generation in molecular gases. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 29 :3293–3302. [10](#), [18](#), [81](#)
- Mairesse, Y. (2005). *Génération et caractérisation d’impulsions attosecondes*. PhD thesis, Université Paris XI. [89](#), [119](#)
- Mairesse, Y., de Bohan, A., Frasinski, L. J., Merdji, H., Dinu, L. C., Monchicourt, P., Breger, P., Kovacev, M., Auguste, T., Carre, B., Muller, H. G., Agostini, P., and Salieres, P. (2004). Optimization of attosecond pulse generation. *Phys. Rev. Lett.*, 93(16) :163901. [11](#), [88](#), [126](#), [142](#)
- Mairesse, Y., de Bohan, A., Frasinski, L. J., Merdji, H., Dinu, L. C., Monchicourt, P., Breger, P., Kovacev, M., Taïeb, R., Carré, B., Muller, H. G., Agostini, P., and Salières, P. (2003). Attosecond synchronization of high-harmonic soft x-rays. *Science*, 302 :1540. [34](#), [82](#), [86](#), [89](#), [109](#), [119](#), [120](#), [126](#), [130](#), [138](#), [140](#)
- Mairesse, Y., Gobert, O., Breger, P., Merdji, H., Meynadier, P., Monchicourt, P., Perdrix, M., Salières, P., and Carré, B. (2005). High harmonic xuv spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction. *Phys. Rev. Lett.*, 94 :173903. [118](#), [148](#)
- Mairesse, Y. and Quere, F. (2005). Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts. *Phys. Rev. A*, 71(1) :011401. [118](#)
- Mauritsson, J., Johnsson, P., Gustafsson, E., L’Huillier, A., Schafer, K., and Gaarde, M. (2006). Attosecond pulse trains generated using two color laser fields. *Phys. Rev. Lett.*, 97 :013001. [107](#)

- McPherson, A., Gibson, G., Jara, H., Johann, U., Luk, T. S., McIntyre, I., Boyer, K., and Rhodes, C. K. (1987). Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *J. Opt. Soc. Am. B*, 4 :595. [9](#), [81](#)
- Merdji, H., Auguste, T., Boutu, W., Caumes, J.-P., Carré, B., Pfeiffer, T., Julien, A., Neumark, D., and Leone, S. (2007). Isolated attosecond pulses usnig a detuned second harmonic field. *submitted*. [35](#)
- Merdji, H., Kovacev, M., Boutu, W., Salières, P., Vernay, F., and Carré, B. (2006). Macroscopic control of high order harmonics quantum paths components for the generation of attosecond pulses. *Phys. Rev. A*, 74 :043804. [22](#), [88](#), [89](#)
- Miyamoto, N., Kamei, M., Yoshitomi, D., Kanai, T., Sekikawa, T., Nakajima, T., and Watanabe, S. (2004). Observation of two-photon above-threshold ionization of rare gases by xuv harmonic photons. *Physical Review Letters*, 93(8) :083903. [30](#)
- Morlens, A.-S., Gautier, J., Rey, G., Zeitoun, P., Caumes, J.-P., Kos-Rosset, M., Merdji, H., Kazamias, S., Cassou, K., and Fajardo, M. (2006). Submicrometer digital in-line holographic microscopy at 32 nm with high-order harmonics. *Opt. Lett.*, 31(21) :3095–3097. [10](#)
- Muller, H. G. (2002). Reconstruction of attosecond harmonic beating by interference of two-photon transitions. *Appl. Phys. B*, 74 :S17. [113](#)
- Nabekawa, Y., Hasegawa, H., Takahashi, E. J., and Midorikawa, K. (2005). Production of doubly charged helium ions by two-photon absorption of an intense sub-10-fs soft x-ray pulse at 42 ev photon energy. *Physical Review Letters*, 94(4) :043001. [30](#)
- Niikura, H., Legare, F., Hasbani, R., Ivanov, M. Y., Villeneuve, D. M., and Corkum, P. B. (2003). Probing molecular dynamics with attosecond resolution using correlated wave packet pairs. *Nature*, 421(6925) :826–829. [90](#), [91](#)
- Nisoli, M., Stagira, S., Silvestri, S. D., Svelto, O., Sartania, S., Cheng, Z., Lenzner, M., Spielmann, C., and Krausz, F. (1997). A novel-high energy pulse compression system : generation of multigigawatt sub-5-fs pulses. *Appl. Phys. B*, 65 :189–196. [160](#)
- Papadogiannis, N. A., Nikolopoulos, L. A. A., Charalambidis, D., Tsakiris, G. D., Tzallas, P., and Witte, K. (2003). Two-photon ionization of he through a superposition of higher harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 90(13) :133902. [30](#)

- Patchkovkii, S., Zhao, Z., Brabec, T., and Villeneuve, D. (2006). High harmonic generation and molecular orbital tomography in multi-electron system : beyond the single active electron approximation. *Phys. Rev. Lett.*, 97 :123003. [136](#), [144](#)
- Paul, P. M., Toma, E. S., Breger, P., Mullot, G., Augé, F., Balcou, P., Muller, H. G., and Agostini, P. (2001). Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, 292 :1689. [34](#), [113](#)
- Pfeifer, T., Kemmer, R., Siptzenpfeil, R., Walter, D., Winterfeldt, C., Gerber, G., and Speilmann, C. (2005). Spatial control of high-harmonic generation in hollow fibers. *Optics Lett.*, 30(12) :1497–1499. [33](#)
- Preston, S., Sanpera, A., Zepf, M., Blyth, W., Smith, C., Wark, J., Key, M., Burnett, K., Nakai, M., Neely, D., and Offenberger, A. (1996). High-order harmonics of 248.6-nm krf laser from helium and neon ions. *Phys. Rev. A*, 53(1) :R31–34. [73](#)
- Roos, L., Constant, E., Balcou, P., Descamps, D., Gaarde, M., Valette, A., Haroutunian, R., and L’Huillier, A. (1999). Controlling phase matching of high-order harmonic generation by manipulating the fundamental field. *Phys. Rev. A*, 60(6) :5010–5018. [33](#)
- Rosca-Pruna, F. and Vrakking, M. (2001). Experimental observation of revival structure in picosecond laser-induced alignment of I₂. *Phys. Rev. Lett.*, 87(15) :153902. [103](#)
- Salieres, P., L’Huillier, A., and Lewenstein, M. (1995). Coherence control of high-order harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 74(19) :3776–3779. [88](#)
- Salières, P., Carré, B., Déroff, L. L., Grasbon, F., Paulus, G. G., Walther, H., Kopold, R., Becker, W., Milojevic, D. B., Sanpera, A., and Lewenstein, M. (2001). Feynman’s path-integral approach for intense-laser-atom interactions. *Science*, 292 :902–905. [22](#), [62](#), [88](#), [99](#), [130](#)
- Sansone, G., Benedetti, E., Calegari, F., Vozzi, C., Avaldi, L., Flammini, R., Poletto, L., Villoresi, P., Altucci, C., Velotta, R., Stagira, S., Silvestri, S. D., and Nisoli, M. (2006). Isolated single-cycle attosecond pulses. *Science*, 314 :443–446. [35](#)
- Schafer, K. J., Yang, B., DiMauro, L. F., and Kulander, K. C. (1993). Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff. *Phys. Rev. Lett.*, 70(11) :1599–1602. [81](#), [82](#)

- Sekikawa, T., Kosuge, A., Kanai, T., and Watanabe, S. (2004). Nonlinear optics in the extreme ultraviolet. *Nature*, 432(7017) :605–608. [10](#)
- Seres, J., Seres, E., Verhoef, A. J., Tempea, G., Streli, C., Wobrauschek, P., Yakovlev, V., Scrinzi, A., Spielmann, C., and Krausz, F. (2005). Source of coherent kiloelectronvolt x-rays. *Nature*, 433(7026) :596–596. [9](#)
- Shan, B. and Chang, Z. (2001). Dramatic extension of the high-order harmonic cutoff by using a long-wavelength driving field. *Phys. Rev. A*, 65 :011804. [18](#)
- Sola, I., Mével, E., Elouga, L., Constant, E., Strelkov, V., Poletto, L., Villoresi, P., Benedetti, E., Caumes, J.-P., Stagira, S., Vozzi, C., Sansone, G., and Nisoli, M. (2006). Controlling attosecond electron dynamics by phase-stabilized polarization gating. *Nature Physics*, 2 :319–322. [35](#)
- Stapelfeldt, H. and Seideman, T. (2003). Aligning molecules with strong laser pulses. *Rev. Mod. Phys.*, 75 :543. [102](#)
- Strickland, D. and Mourou, G. (1985). Compression of amplified chirped pulses. *Opt. Comm.*, 56 :219–221. [51](#)
- Takahashi, E. ., Nabekawa, Y., Mashiko, H., Hasegawa, H., Suda, A., and Midorikawa, K. (2004). Generation of strong optical field in soft x-ray region by using high-order harmonics. *IEEE journal of selected topics in quantum electronics*, 10(6) :1315–1327. [32](#)
- Takahashi, E., Nabekawa, Y., Nurhuda, M., and Midorikawa, K. (2003). Generation of high-energy high-order harmonics by use of a long interaction medium. *J. Opt. Soc. Am. B*, 20(1) :158–165. [10](#)
- Takahashi, E., Nabekawa, Y., Otsuka, T., Obara, M., and Midorikawa, K. (2002). Generation of highly coherent soft x rays by high-order harmonics. *Phys. Rev. A*, 66 :021802. [32](#)
- Talebpour, A., Chien, C.-Y., and Chin, S. (1996). The effects of dissociative recombination in multiphoton ionization of O₂. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 29 :L677–680. [85](#)
- Tate, J., Auguste, T., Muller, H., Salières, P., Agostini, P., and DiMauro, L. (2007). Scaling of wave-packet dynamics in an intense midinfrared field. *Phys. Rev. Lett.*, 98 :13901. [18](#)

- Tong, X., Zhao, Z., and Lin, C. (2002). Theory of molecular tunneling ionization. *Phys. Rev. A*, 66 :033402. [85](#)
- Torres, R., Kajumba, N., Underwood, J., Robinson, J., Baker, S., Tisch, J., de Nalda, R., Bryan, W., Velotta, R., Altucci, C., Turcu, I., and Marangos, J. (2007). Probing orbital structure of polyatomic molecules by high-order harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.*, 98 :203007. [155](#)
- Uiberacker, M., Uphues, T., Schultze, M., Verhoef, A., Yakovlev, V., Kling, M., Rauschenberger, J., Kabachnik, N., Schröder, H., Lezius, M., Kompa, K., Müller, H.-G., Vrakking, M., Hendel, S., Kleineberg, U., Drescher, U. H. M., and Krausz, F. (2007). Attosecond real-time observation of electron tunnelling in atoms. *Nature*, 446 :627–632. [11](#)
- Underwood, J., Sussman, B., and Stolow, A. (2005). Field-free three-dimensional molecular axis alignment. *Phys. Rev. Lett.*, 94 :143002. [107](#)
- Veniard, V., Taieb, R., and Maquet, A. (1996). Phase dependence of (n+1)-color (n [greater-than] 1) ir-uv photoionization of atoms with higher harmonics. *Phys. Rev. A*, 54(1) :721–728. [114](#)
- Villoresi, P., Bonora, S., Pascolini, M., Poletto, L., Tondello, G., Vozzi, C., Nisoli, M., Sansone, G., Stagira, S., and Silvestri, S. D. (2004). Optimization of high-harmonic generation by adaptative control of a sub-10-fs pulse wave-front. *Opt. Lett.*, 29(2) :207–209. [33](#)
- Vozzi, C., Calegari, F., Benedetti, E., Caumes, J.-P., Sansone, G., Stagira, S., Nisoli, M., Torres, R., Heesel, E., Kajumba, N., Marangos, J., Altucci, C., and Velotta, R. (2005). Controlling two-center interference in molecular high harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.*, 95(15) :153902. [96](#), [151](#)
- Wabnitz, H., Mairesse, Y., Frasinski, L., Stankiewicz, M., Boutu, W., Breger, P., Johnsson, P., Merdji, H., Monchicourt, P., Salières, P., Varju, K., Vitteau, M., and Carré, B. (2006). Generation of attosecond pulses in molecular nitrogen. *Eur. Phys. J.D*, 40 :305–311. [128](#), [129](#), [131](#)
- Wagner, N., Wüest, A., Christov, I., Popmintchev, T., Zhou, X., Murnane, M., and Kapteyn, H. (2006). Monitoring molecular dynamics using coherent electrons from high harmonic generation. *PNAS*, 103(36) :13279–13285. [157](#)
- Wahlstrom, C.-G., Larsson, J., Persson, A., Starczewski, T., Svanberg, S., Salières, P., Balcou, P., and L’Huillier, A. (1993). High-order harmonic generation

- in rare gases with an intense short-pulse laser. *Phys. Rev. A*, 48(6) :4709–4720. [18](#), [73](#)
- Walsh, T., Decker, J., and Chin, S. (1993). Tunnel ionization of simple molecules by an intense CO₂ laser. *J Phys B : At. Mol. Opt. Phys.*, 26 :L85–90. [85](#)
- Watanabe, S., Kondo, K., Nabekawa, Y., Sagisaka, A., and Kobayashi, Y. (1994). Two-color phase control in tunneling ionization and harmonic generation by a strong laser field and its third harmonic. *Phys. Rev. Lett.*, 73(20) :2692–2695. [18](#)
- Wu, M., Bemish, R., and Miller, R. (1994). Photodissociation of molecules oriented by dc electric fields : Determining photofragment angular distributions. *J. Chem. Phys.*, 101 :9447. [101](#)
- Xie, X., Wickenhauser, M., Scrinzi, A., Boutu, W., Merdji, H., and Salières, P. (2007). Sub-cycle dynamics in the laser-ionization of molecules. *Submitted*. [137](#), [144](#), [149](#)
- Yoshitomi, D., Nees, J., Miyamoto, N., Sekikawa, T., Kanai, T., Mourou, G., and Watanabe, S. (2004). Phase-matched enhancements of high-harmonic soft x-rays by adaptative wave-front control with a genetic algorithm. *Appl. Phys. B*, 78 :275–280. [33](#)